ÉTUDE CINÉTIQUE, AU LABORATOIRE, DE L'ÉPURATION D'UNE EAU DE RIVIÈRE (Isère) PAR DES SÉDIMENTES EN SUSPENSION

Cas des radionucléides

^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Hg

B. LACHET*

(Manuscrit reçu le 19 juin 1972)

RÉSUMÉ

La cinétique d'épuration de l'eau contenant des radionucléides par des sédiments en suspension peut se traduire en fonction du temps par une équation empirique de la forme $R = R_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n$ où « a » et « n » sont deux paramètres ajustés par la méthode des moindres carrés et où « R_0 » et « R » sont les activités de l'eau initiale et au temps « t ».

Cet ajustement s'avère satisfaisant de façon hautement significative dans tous les cas étudiés :

— Sédiments : tamisés (sables fins ou limons) ou non; à la concentration de 1 g/l ou de 20 g/l;

— Radionucléides : ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Hg , tantôt avec entraîneur, tantôt sans entraîneur; sous forme de chlorure, nitrate, citrate, acétate, nitrato-nitrosyl ou EDTA.

ABSTRACT

The kinetics of purification of water containing radionuclides by sedimentary suspension can be interpreted as a function of time by an empirical equation of the form $R = R_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n$ where « a » and « n » are two parameters fixed by the least squares method and where « R_0 » and « R » are respectively the activities of water initially and after time « t ».

This fit proves both satisfactory and highly significant under all studied cases :

— sédiments : screened (fine sands or silt) or unscreened in 1 g/l or 20 g/l concentrations;

— Radionuclides : ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Hg , with or without a carrier; under chloride, nitrate, citrate, acetate, nitrato-nitrosyl or EDTA forms.

* Département de Recherche fondamentale. Laboratoire de biologie végétale, Commissariat à l'Energie Atomique. Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble. BP. 85-38041-Grenoble-Cedex.

INTRODUCTION

Lors de l'étude du comportement du nitrato-nitrosyl ruthénium 106 dans un modèle réduit simulant une berge de l'Isère, on a été amené à considérer l'influence, sur l'épuration de la phase aqueuse de notre système, de facteurs tels que les conditions hydrodynamiques ou les sédiments en suspension [1].

Ce dernier point est très important pour l'étude de la dispersion d'un radionucléide dans une rivière à régime fortement alluvial comme l'Isère qui charrie environ 200 000 tonnes de sédiments en suspension par an. On a tout d'abord tracé, expérimentalement, les courbes d'épuration de l'eau contenant du ruthénium 106 et une forte teneur en sédiments (20 g/l). On a pu ajuster, par la méthode des moindres carrés, les deux paramètres d'une équation empirique dont la courbe représentative suit de très près la courbe expérimentale. Puis nous avons repris ces expériences avec d'autres radionucléides (^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Hg) et une teneur en sédiments très proche de celle de l'Isère (1 g/l) et nous avons constaté que la même équation permettait, dans tous les cas, des ajustements très rigoureux des courbes expérimentales traduisant l'activité de l'eau en fonction du temps de contact avec les sédiments en suspension.

Dans les conditions naturelles, la distance parcourue par l'eau et les particules alluviales de la rivière sont fonction du temps. Ces résultats montrent que ce paramètre entre dans une équation simple qui permet d'évaluer, avec précision, l'épuration de l'eau pour huit radionucléides très couramment rencontrés dans les effluents de diverses installations nucléaires. Ces calculs seront utiles en radioprotection pour définir les « acceptances » d'un site de rejet en rivière à régime torrentiel.

CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

La quantité de sédiments secs pesés (1 g non tamisé avec ^{106}Ru ; 40 mg de la fraction des sables fins ou des limons dans les autres cas) est introduite dans un erlenmeyer de 50 ml; l'eau de l'Isère est ensuite introduite à la pipette (50 cm³ avec ^{106}Ru , 39 cm³ dans les autres cas). Un cm³ de solution radioactive est ajouté et l'agitation est commencée immédiatement. Dans les expériences faites avec ^{106}Ru , l'agitation est réalisée avec un turbulent magnétique gainé de téflon; dans les autres cas, les erlenmeyers sont fixés sur un plateau rotatif tournant à la vitesse de 350 tours par minute. La séparation des sédiments et de l'eau est réalisée sitôt la fin de l'agitation. Dans le cas de ^{106}Ru , cette séparation est réalisée par centrifugation; dans les autres cas, elle l'est à l'aide d'un dispositif expérimental usiné dans du plexiglass rigide transparent et directement adaptable sur les containers de comptage. Les temps d'agitation s'échelonnent de 0,5 à 192 minutes. Chaque essai est répété six fois et des témoins sans sédiment pour tous les temps de contact permettent éventuellement d'éliminer l'épuration due au phénomène d'adsorption sur la verrerie et sur les systèmes de séparation des phases aqueuse et solide.

La température est de 25 °C dans le cas de ^{106}Ru et de 21 °C dans les autres cas.

Le tableau I résume les caractéristiques physico-chimiques de l'eau et des sédiments [2 - 3].

TABLEAU I
CARACTÉRISTIQUES PHYSICO-CHIMIQUES

1) *L'eau de l'Isère :*

- Résistivité : $\approx 3\,000\ \Omega\cdot\text{cm}^2/\text{cm}$ à $20\ ^\circ\text{C}$
- pH = 8,1
- salinité : 400 mg/l
- dureté : 3,15 meq/l
- calcium : 31 mg/l
- potassium : 1,6 mg/l
- oxygène dissous : 8,2 mg/l

2) *Les sédiments :*

- pH = 8,3
- K^+ extrait par une solution $\text{NH}_4\text{Cl M}$: 1,311 meq/100 g
- Na^+ — : 0,661 meq/100 g
- Mg^{++} — : 0,641 meq/100 g
- Ca^{++} — : 63,801 meq/100 g
- granulométrie : sables grossiers ($> 0,2\ \text{mm}$) 6,78 %
sables fins ($0,02$ à $0,2\ \text{mm}$) 91,86 %
limons et argiles ($< 0,02\ \text{mm}$) 1,36 %
- CaCO_3 : 23,22 %
- Carbone organique : 0,69 %
- Azote : 0,11 %
- P_2O_5 : 0,18 %
- K_2O : 0,05 %
- CaO : 12,78 %

RADIONUCLÉIDES ET MESURES DE RADIOACTIVITÉ

1) ^{106}Ru :

C'est le complexe nitrato-nitrosyl du centre britannique de Amersham sans entraîneur qui a été utilisé à deux concentrations initiales (1,0 nCi et 4,7 nCi par ml). Les mesures d'activité de cet isotope ont été effectuées sur un ensemble MECASERTO type MO_{13} .

2) ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Hg :

Ces mélanges de radionucléides ont été réalisés de telle sorte que les pics photo-électriques γ aient des hauteurs égales sur l'oscilloscope d'un sélecteur à 400 canaux INTERTECHNIQUE SA 40 B couplé à une cellule de comptage à bas bruit de fond LEMER CBM 12.

Cette précaution permet d'améliorer le dépouillement mathématique par la méthode des moindres carrés appliquée à l'ajustement des spectres complexes aux spectres de témoins purs. Ces calculs sont réalisés par un programme FORTRAN IV niveau G sur l'ordinateur IBM 360-50 du CEN-G [4].

Le tableau II résume les caractéristiques des radionucléides utilisés :

TABLEAU II
CARACTÉRISTIQUES DES RADIONUCLÉIDES

Isotope	Forme chimique	Entraîneur	Période	Energies en MeV
⁵¹ Cr	EDTA	0,548 μmole/l	26 jours	0,32; 0,267
⁵⁹ Fe	Citrate	5,72 pmole/l	46 jours	1,1; 1,3
⁶⁰ Co	Chlorure	0,23 nmole/l	5,25 ans	1,17; 1,332
⁸⁵ Sr	Nitrate	0,45 μmole/l	65 jours	0,513
¹⁰⁶ Ru	Nitrato-nitrosyl	—	1 an	(¹⁰⁶ Rh) 0,513; 0,624; 1,045
¹³⁷ Cs	Chlorure	—	33 ans	0,663
¹⁴¹ Ce	Chlorure	9,4 nmole/l	32,5 jours	0,141
²⁰³ Hg	Acétate	45,16 pmole/l	46,5 jours	0,279

MISE EN ÉQUATION DES RÉSULTATS

CHOIX DE L'ÉQUATION

Les neuf courbes obtenues en portant les activités en fonction du temps sont très régulières et présentent, approximativement, la propriété suivante : Pour des intervalles de temps successifs dont les durées sont en progression géométrique de raison 2, les ordonnées successives sont diminuées d'un facteur à peu près constant. On peut donc penser qu'une fonction hyperbolique traduira convenablement la courbe expérimentale. L'ordonnée à l'origine ayant une valeur finie, on a choisi une équation de la forme

$$R = R_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$$

avec R = activité de l'isotope considéré au temps t dans la phase aqueuse,
 R_0 = activité initiale
 t = temps de contact du radionucléide avec le sédiment en suspension
 a et n , paramètres à ajuster.

On n'a pas jugé utile d'introduire un troisième paramètre qui satisfasse la condition $R \rightarrow R_\infty > 0$ quand $t \rightarrow \infty$; en effet, il suffit que l'une des deux propositions suivantes soit admissible pour se contenter de l'équation ci-dessus : t a un domaine de variation convenablement borné supérieurement ou R_∞ est négligeable.

MÉTHODE D'AJUSTEMENT

1) Première approximation des paramètres

On ne peut pas évaluer les paramètres a et n en écrivant la validité de l'équation pour deux points expérimentaux (t_1, R_1) et (t_2, R_2) , car on est conduit à résoudre un système d'équations transcendantes. Par contre, on peut utiliser

les relations liant a et n aux pentes en deux points de la courbe représentant $\ln R$ en fonction du temps.

En effet :

$$R = R_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n$$

$$\ln R = \ln R_0 + n \ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$$

$$\frac{d(\ln R)}{dt} = \frac{n}{a + t} = p$$

p est mesurable en deux points du graphique :

$$\frac{n}{a + t_1} = p_1 \quad \text{et} \quad \frac{n}{a + t_2} = p_2$$

d'où les estimations grossières :

$$a = \frac{p_2 t_2 - p_1 t_1}{p_1 - p_2} \quad \text{et} \quad n = \frac{p_1 p_2 (t_2 - t_1)}{p_1 - p_2}.$$

2) Ajustement par la méthode des moindres carrés

Cet ajustement est réalisé à l'aide de l'ordinateur IBM 360-50 du CEN-G par un programme FORTRAN IV niveau G qui appelle le sous-programme AMAGT [5]. La méthode utilisée est un compromis entre la méthode de Gauss et la méthode du gradient [6].

Elle fait appel aux dérivées partielles de la fonction R par rapport aux paramètres a et n :

$$\frac{\partial R}{\partial a} = -\frac{R_0 n t}{a^2} \left(1 + \frac{t}{a}\right)^{n-1} \quad \text{et} \quad \frac{\partial R}{\partial n} = R_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n \ln \left(1 + \frac{t}{a}\right).$$

Outre les paramètres ajustés, le programme perfore sur cartes et liste les ordonnées ajustées, les logarithmes népériens des ordonnées expérimentales et les transformées de la variable sous la forme $\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$.

VÉRIFICATIONS DE LA VALIDITÉ DE L'AJUSTEMENT

1) Régression linéaire entre ordonnées expérimentales et ajustées

Dans les tableaux de résultats, on indique la valeur du F de Fisher-Snedecor, rapport du carré moyen dû à la régression au carré moyen résiduel qui, comparé à sa valeur critique F_c , permet de conclure à la haute signification de la régression linéaire. On constate, de plus, que le coefficient de cette régression est homogène à l'unité.

Les valeurs expérimentale (ρ) et critique (ρ_c) du coefficient de corrélation linéaire sont également mentionnées.

2) Linéarisation de l'équation

Si l'ajustement est correct, la représentative de $\ln R = f \left[\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right) \right]$ doit être une droite de pente n . Le même test que ci-dessus permet également de conclure à la haute signification de la régression linéaire entre ces deux variables ainsi qu'à l'homogénéité du coefficient de régression et de la valeur de n ajustée par les moindres carrés. Les valeurs expérimentale et critique du coefficient de corrélation linéaire sont aussi indiquées (tableaux III à XI).

TABLEAU III

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{51}Cr CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'isère, 40 cm³;

Sédiments : de l'isère, fraction tamisée des limons, 40 mg;

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute;

Activité initiale : 1,2550 $\mu\text{Ci } ^{51}\text{Cr}$ en solution contenant 0,548 $\mu\text{moles/l}$ d'EDTA chromique

Agitation t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	$\mu\text{Ci } ^{51}\text{Cr}$ (moyenne de 6 mesures)	$\mu\text{Ci } ^{51}\text{Cr}$ (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$	$\ln ([^{51}\text{Cr}]_{\text{mesurée}})$
1,5	9375	1,2533	1,2537	0,2176	0,2258
3	40000	1,2525	1,2527	0,3962	0,2251
6	14286	1,2520	1,2510	0,6793	0,2247
11	10000	1,2500	1,2489	1,0235	0,2231
22	6818	1,2433	1,2460	1,5185	0,2178
45	3896	1,2417	1,2425	2,1154	0,2165
90	33333	1,2390	1,2388	2,7464	0,2143

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{51}\text{Cr}] = [^{51}\text{Cr}]_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$: $a = 6,170$

$$n = -0,0047$$

Régression linéaire entre $[^{51}\text{Cr}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{51}\text{Cr}]_{\text{ajustée}}$

$$F = 104 \quad F_c = 47,2 \quad \alpha = 0,001$$

$$0,838 \leq 1 \approx b = 1,044 \leq 1,251 \quad \alpha = 0,05$$

$$q = 0,9768 \quad |q_c| = 0,9509 \quad \alpha = 0,001 \text{ (5 D.L.)}$$

Régression linéaire entre $\ln ([^{51}\text{Cr}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$

$$F = 108 \quad F_c = 47,2 \quad \alpha = 0,001$$

$$-0,0059 \leq n \approx b = -0,0049 \leq -0,0040 \quad \alpha = 0,05$$

$$q = -0,9777 \quad |q_c| = 0,9509 \quad \alpha = 0,001$$

TABLEAU IV

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{59}Fe CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère, 40 cm³;

Sédiments : de l'Isère, fraction tamisée des limons, 40 mg;

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute;

Activité initiale : 0,2145 μCi de ^{59}Fe dans une solution à 5,72 pmole/l de citrate ferrique

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	$\mu\text{Ci } ^{59}\text{Fe}$ (moyenne de 6 mesures)	$\mu\text{Ci } ^{59}\text{Fe}$ (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$	$\ln ([^{59}\text{Fe}]_{\text{mesurée}})$
1,5	566030	0,2138	0,2143	0,0163	— 1,5426
3	909091	0,2135	0,2141	0,0324	— 1,5441
6	172414	0,2134	0,2137	0,0638	— 1,5446
11	731707	0,2128	0,2131	0,1140	— 1,5472
22	400000	0,2117	0,2119	0,2162	— 1,5523
45	600000	0,2115	0,2098	0,4013	— 1,5535
90	149254	0,2045	0,2065	0,6869	— 1,5872

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{59}\text{Fe}] = [^{59}\text{Fe}]_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$: $a = 91,134$

$n = -0,056$

Régression linéaire entre $[^{59}\text{Fe}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{59}\text{Fe}]_{\text{ajustée}}$

$F = 42$ $F_c = 22,8$ $\alpha = 0,005$ (5 D.L.)

$0,7442 \leq 1 \approx b = 1,0786 \leq 1,4130$ $\alpha = 0,05$

$\varrho = 0,9456$ $|\varrho_c| = 0,8745$ $\alpha = 0,01$

Régression linéaire entre $\ln ([^{59}\text{Fe}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$

$F = 41,8$ $F_c = 22,8$ $\alpha = 0,005$

$-0,0786 \leq n \approx b = -0,0600 \leq -0,0413$ $\alpha = 0,05$

$\varrho = -0,9451$ $|\varrho_c| = 0,8745$ $\alpha = 0,01$

TABLEAU V

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{60}Co CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau de l'Isère, 40 cm³;

Sédiments : de l'Isère, fraction tamisée des sables fins, 40 mg;

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute;

Activité initiale : 450 nCi ^{60}Co en solution contenant 0,23 nmole/l de Co Cl_2

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{60}Co (moyenne de 6 mesures)	nCi ^{60}Co (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$	$\ln ([^{60}\text{Co}]_{\text{mesurée}})$
1	0,158	447,050	447,672	0,061	6,103
2	0,093	446,280	445,490	0,119	6,101
4	0,006	442,800	441,498	0,225	6,093
10	0,017	433,933	431,727	0,490	6,073
45	0,011	395,533	401,529	1,346	5,980
90	0,008	387,483	383,140	1,900	5,960

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{60}\text{Co}] = [^{60}\text{Co}]_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$: $a = 15,829$

$$n = -0,085$$

Régression linéaire entre $[^{60}\text{Co}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{60}\text{Co}]_{\text{ajustée}}$

$$F = 230 \quad F_c = 74,1 \quad \alpha = 0,001 \quad (4 \text{ D.L.})$$

$$0,8587 \leq 1 \approx b = 0,9992 \leq 1,1396 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = -0,9914 \quad |\varrho_c| = 0,9741 \quad \alpha = 0,001$$

Régression linéaire entre $\ln ([^{60}\text{Co}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$

$$F = 202 \quad F_c = 74,1 \quad \alpha = 0,001$$

$$-0,09684 \leq n \approx b = -0,08421 \leq -0,07157 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = -0,9902 \quad |\varrho_c| = 0,9741 \quad \alpha = 0,001$$

TABLEAU VI

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{85}Sr CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère : 40 cm³;

Sédiments : de l'Isère, fraction tamisée des sables fins, 40 mg

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute;

Activité initiale : 83,607 nCi ^{85}Sr en solution contenant 0,45 $\mu\text{mole/l}$ de $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{85}Sr (moyennes de 6 mesures)	nCi ^{85}Sr (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$	$\ln ([^{85}\text{Sr}]_{\text{mesurée}})$
1	11,628	83,572	83,531	0,011	4,426
4	0,353	83,506	83,336	0,042	4,425
10	1,946	83,298	82,953	0,103	4,422
20	1,497	82,038	82,364	0,196	4,407
90	0,251	79,488	79,372	0,681	4,376

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{85}\text{Sr}] = [^{85}\text{Sr}]_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$: $a = 92,239$
 $n = -0,076$

Régression linéaire entre $[^{85}\text{Sr}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{85}\text{Sr}]_{\text{ajustée}}$

$F = 144$ $F_c = 55,6$ $\alpha = 0,005$ (3 D.L.)
 $0,8102 \leq 1 \approx b = 1,0075 \leq 1,2049$ $\alpha = 0,05$
 $q = 0,9898$ $|q_c| = 0,9587$ $\alpha = 0,01$

Régression linéaire entre $\ln ([^{85}\text{Sr}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$

$F = 146$ $F_c = 55,6$ $\alpha = 0,005$
 $-0,0910 \leq n \approx b = -0,0761 \leq -0,0613$ $\alpha = 0,05$
 $q = -0,9898$ $|q_c| = 0,9587$ $\alpha = 0,01$

TABLEAU VII

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{106}Ru CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère : 50 cm³;

Sédiments : de l'Isère non tamisés, 1 g

Agitation : magnétique

Activité initiale : 50,54 nCi ^{106}Ru nitrato-nitrosyl sans entraîneur

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{106}Ru (moyennes de 6 mesures)	nCi ^{106}Ru (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$	$\ln ([^{106}\text{Ru}]_{\text{mesurée}})$
0,5	0,391	37,218	39,492	0,824	3,617
1	0,079	34,265	34,560	1,269	3,534
2	0,234	28,354	29,386	1,811	3,345
4	0,851	25,798	24,496	2,419	3,250
8	0,260	20,142	20,179	3,067	3,003
16	4,585	16,720	16,513	3,736	2,817
32	0,707	13,216	13,467	4,417	2,581
64	1,192	10,827	10,963	5,105	2,382
128	1,213	9,439	8,917	5,795	2,245
192	15,140	7,773	7,900	6,199	2,051

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{106}\text{Ru}] = [^{106}\text{Ru}]_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n$: $a = 0,391$

$n = -0,299$

Régression linéaire entre $[^{106}\text{Ru}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{106}\text{Ru}]_{\text{ajustée}}$

$F = 1\,478$ $F_c = 25,4$ $\alpha = 0,001$ (8 D.L.)

$0,8946 \leq 1 \approx b = 0,9516 \leq 1,0087$ $\alpha = 0,025$

$\varrho = 0,9973$ $|\varrho_c| = 0,8721$ $\alpha = 0,001$

Régression linéaire entre $\ln ([^{106}\text{Ru}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$

$F = 2\,235$ $F_c = 25,4$ $\alpha = 0,001$

$-0,3036 \leq n \approx b = -0,2921 \leq -0,2806$ $\alpha = 0,05$

$\varrho = -0,9982$ $|\varrho_c| = 0,8721$ $\alpha = 0,001$

TABLEAU VIII

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{106}Ru CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère, 50 cm³

Sédiments : de l'Isère non tamisés, 1 g

Agitation : magnétique

Activité initiale : 238,56 nCi ^{106}Ru nitrato-nitrosyl sans entraîneur

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{106}Ru (moyennes de 6 mesures)	nCi ^{106}Ru (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$	$\ln([^{106}\text{Ru}]_{\text{mesurée}})$
0,5	0,056	151,72	160,54	1,410	5,022
1	0,076	133,32	137,06	1,973	4,893
2	0,010	132,24	115,12	2,594	4,885
4	0,034	108,34	95,78	3,249	4,685
8	0,053	89,18	79,27	3,923	4,491
16	0,210	70,76	65,43	4,606	4,259
32	0,036	57,62	53,93	5,294	4,054
64	0,133	37,64	44,42	5,985	3,628
128	2,396	36,08	36,58	6,677	3,586

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{106}\text{Ru}] = [^{106}\text{Ru}]_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$: $a = 0,161$

$$n = -0,281$$

Régression linéaire entre $[^{106}\text{Ru}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{106}\text{Ru}]_{\text{ajustée}}$

$$F = 158 \quad F_c = 29,3 \quad \alpha = 0,001 \quad (7 \text{ D.L.})$$

$$0,8341 \leq 1 \approx b = 0,9824 \leq 1,1307 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = -0,9785 \quad |\varrho_c| = 0,8983 \quad \alpha = 0,001$$

Régression linéaire entre $\ln([^{106}\text{Ru}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$

$$F = 201 \quad F_c = 29,3 \quad \alpha = 0,001$$

$$-0,3320 \leq n \approx b = -0,2928 \leq -0,2537 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = -0,9830 \quad |\varrho_c| = 0,8983 \quad \alpha = 0,001$$

TABLEAU IX

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{137}Cs CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère, 40 cm³

Sédiments : de l'Isère, fraction tamisée des sables fins, 40 mg

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute

Activité initiale : 89,53 nCi ^{137}Cs chlorure sans entraîneur

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{137}Cs (moyennes de 6 mesures)	nCi ^{137}Cs (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$	$\ln ([^{137}\text{Cs}]_{\text{mesurée}})$
0,5	0,139	74,196	71,659	0,910	4,307
1	0,096	65,860	63,900	1,378	4,188
2	0,030	57,518	55,730	1,937	4,052
3	0,083	48,208	51,086	2,293	3,876
4	0,213	44,256	47,913	2,555	3,790
7	0,038	40,043	42,130	3,081	3,690
10	0,061	38,982	38,740	3,424	3,663
15	0,055	37,648	35,175	3,818	3,628
20	0,218	35,276	32,829	4,101	3,563
30	0,039	31,788	29,769	4,501	3,459
45	0,036	25,283	26,982	4,902	3,230
90	0,077	22,180	22,794	5,592	3,099

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{137}\text{Cs}] = [^{137}\text{Cs}]_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n$: $a = 0,337$

$n = -0,245$

Régression linéaire entre $[^{137}\text{Cs}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{137}\text{Cs}]_{\text{ajustée}}$

$F = 469$ $F_c = 21$ $\alpha = 0,001$ (10 D.L.)

$0,9394 \leq 1 \approx b = 1,0253 \leq 1,8120$ $\alpha = 0,05$

$\varrho = 0,9895$ $|\varrho_c| = 0,8233$ $\alpha = 0,001$

Régression linéaire entre $\ln [^{137}\text{Cs}]_{\text{mesurée}}$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$

$F = 408$ $F_c = 21$ $\alpha = 0,001$

$-0,2690 \leq n \approx b = -0,2468 \leq -0,2247$ $\alpha = 0,005$

$\varrho = -0,9880$ $|\varrho_c| = 0,8233$ $\alpha = 0,001$

TABLEAU X

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{141}Ce CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère, 40 cm³

Sédiments : de l'Isère, fraction tamisée des sables fins, 40 mg

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute

Activité initiale : 66,54 nCi ^{141}Ce en solution contenant 9,4 nmole/l de CeCl_3

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{141}Ce (moyennes de 6 mesures)	nCi ^{141}Ce (ajustement par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$	$\ln ([^{141}\text{Ce}]_{\text{mesurée}})$
0,5	0,083	57,972	60,414	0,285	4,060
1	0,190	51,717	56,044	0,507	3,946
2	0,189	51,618	50,036	0,841	3,944
4	0,076	45,636	42,956	1,292	3,821
7	0,066	40,125	37,078	1,726	3,692
20	0,622	27,698	27,085	2,653	3,321
30	0,037	22,484	23,800	3,035	3,113
90	0,208	14,198	16,585	4,101	2,653

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{141}\text{Ce}] = [^{141}\text{Ce}]_0 \left(1 + \frac{t}{a} \right)^n$: $a = 1,516$

$$n = -0,339$$

Régression linéaire entre $[^{141}\text{Ce}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{141}\text{Ce}]_{\text{ajustée}}$

$$F = 204 \quad F_c = 35,5 \quad \alpha = 0,001 \quad (6 \text{ D.L.})$$

$$0,8457 \leq 1 \approx b = 0,9790 \leq 1,1124 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = 0,9856 \quad |\varrho_c| = 0,9249 \quad \alpha = 0,001$$

Régression linéaire entre $\ln [^{141}\text{Ce}]_{\text{mesurée}}$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a} \right)$

$$F = 272 \quad F_c = 35,5 \quad \alpha = 0,001$$

$$-0,4059 \leq n \approx b = -0,3631 \leq -0,3203 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = -0,9892 \quad |\varrho_c| = 0,9249 \quad \alpha = 0,001$$

TABLEAU XI

CINÉTIQUE DE L'ÉPURATION DU ^{203}Hg CONTENU DANS DE L'EAU DE L'ISÈRE
PAR DES SÉDIMENTS S'Y TROUVANT EN SUSPENSION

Eau : de l'Isère, 40 cm³

Sédiments : de l'Isère, fraction tamisée des limons, 40 mg

Agitation : sur plateau rotatif à 350 tours par minute

Activité initiale : 3,8 nCi ^{203}Hg en solution contenant 45,16 pmole/l sous forme d'acétate mercurique

Agitations t en mn	Poids statistiques à 5 degrés de liberté	nCi ^{203}Hg (moyennes de 6 mesures)	nCi ^{203}Hg (ajustements par moindres carrés)	$\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$	$\ln ([^{203}\text{Hg}]_{\text{mesurée}})$
0,5	10	3,100	3,000	0,0293	1,1314
1,5	33,333	1,900	1,907	0,0856	0,6419
3	42,674	1,000	1,011	0,1644	0
6	25	0,320	0,324	0,3055	-1,1394
11	31	0,099	0,066	0,5038	-2,3126

Paramètres ajustés pour l'équation $[^{203}\text{Hg}] = [^{203}\text{Hg}]_0 \left(1 + \frac{t}{a}\right)^n$: $a = 16,79$
 $n = -8,06$

Régression linéaire entre $[^{203}\text{Hg}]_{\text{mesurée}}$ et $[^{203}\text{Hg}]_{\text{ajustée}}$

$$F = 3\,255 \quad F_c = 167 \quad \alpha = 0,001$$

$$0,9813 \leq 1 \approx b = 1,0235 \leq 1,0657 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = 0,9995 \quad |\varrho_c| = 0,9912 \quad \alpha = 0,001 \quad (3 \text{ D.L.})$$

Régression linéaire entre $\ln ([^{203}\text{Hg}]_{\text{mesurée}})$ et $\ln \left(1 + \frac{t}{a}\right)$

$$F = 460 \quad F_c = 167 \quad \alpha = 0,001$$

$$-8,0899 \leq n \approx b = -7,2900 \leq -6,4902 \quad \alpha = 0,05$$

$$\varrho = -0,9968 \quad |\varrho_c| = 0,9912 \quad \alpha = 0,001$$

CONCLUSION

Etant donné la variété des conditions dans lesquelles s'applique l'équation proposée (huit radionucléides de familles chimiques diverses avec ou sans entraîneur et des anions associés différents ou des formes moléculaires complexes, des sédiments tamisés ou non à la concentration de 1 g/l ou 20 g/l, une agitation magnétique ou rotative), nous pensons qu'elle peut présenter une grande utilité dans l'étude des acceptances des sites de rejets d'effluents radioactifs, à condition de l'associer à des données hydrologiques précises telles que teneur en sédiments, vitesse d'écoulement de la rivière, lieu et vitesse de sédimentation des particules en suspension.

Quelques expériences de laboratoire dans des conditions types réalisées une fois pour toutes seront la base des ajustements qui serviront à des fins prévisionnelles. L'utilisation de molécules marquées permettrait l'extension de la méthode aux effluents organiques.

La diversité du champ d'application de cette équation empirique laisse bien augurer de l'intérêt qu'elle pourra présenter pour les Agences de Bassins, dans l'évaluation des teneurs en polluants chimiques ou radiochimiques.

REMERCIEMENTS

Monsieur Amardeil, qui a longtemps dirigé la section de Radioprotection du CEN-G, est à l'origine de ce travail dont il a bien voulu suivre l'évolution en nous faisant bénéficier de ses fructueuses remarques : nous lui exprimons notre profonde gratitude.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] LACHET B., GAGNAIRE J., PLEBIN R. Répartition de ^{106}Ru dans un modèle réduit de berge de rivière : quelques aspects hydrodynamiques et cinétiques de son adsorption sur les sédiments. Rapport CEA, R 4304 1972.
- [2] MAGNAVAL R. Répartition d'une pollution radioactive complexe : ^{106}Ru , ^{54}Mn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co dans divers systèmes biologiques d'eau douce. Thèse Doct. Ing. Grenoble, 1968.
- [3] CATRINA I., PLEBIN R., LACHET B., GAGNAIRE J. La nutrition azotée du peuplier et les interactions ioniques, étudiées par les traceurs radioactifs ^{45}Ca , ^{59}Fe , ^{35}S . Rapport CEA R 4327, 1972.
- [4] JUNOD E. Eléments de programmes en spectrométrie gamma et analyse par activation. Rapport CEA 3955, 1970.
- [5] ALLOUARD Y. Sous-programme d'ajustement d'une fonction non linéaire à une courbe expérimentale suivant le critère des moindres carrés. Note INT/LNC/69-3/YA, 1969.
- [6] MARQUARDT D.W. J. of the Soc. for industrial and applied mathematics, vol. 1 June 1964, n° 2, p. 431.
- [7] LACHET B. Corrélation entre deux variables - FORTRAN IV. Note BIO/V./25, 1969.