

Gestion des déchets radioactifs au sein d'un service de médecine nucléaire



Valentin Bonvin

Hôpitaux Universitaires de Genève
Service de médecine nucléaire
Unité cyclotron

Dans notre service nous utilisons des radiopharmaceutiques pour effectuer:

- Des examens diagnostiques comme la scintigraphie (TEMP) et la tomographie par émission de positons (TEP)
 - > 2 SPECT-CT and 2 PET-CT à disposition

- De la radiothérapie métabolique
 - > 4 chambres de traitement à disposition

De plus, nous produisons une partie des radiopharmaceutiques à l'aide :

- De générateurs de radionucléides
- D'un accélérateur de proton (cyclotron)

Overview des isotopes/radiopharmaceutiques utilisés

Diagnostique		
Radionuclides	Half-life	Activity manipulated [GBq]
Rb-82	1.25 min	405
N-13	9.97 min	773
Ga-68	67.71 min	46
F-18	109.77 min	6423
Tc-99m	6.01 h	
In-111	2.80 d	1
I-123	13.22 d	47
I-125	59.49 d	0.01

 Produits partiellement avec le cyclotron →
 Produits à l'aide de générateur

Thérapeutique		
Radionuclides	Half-life	Activity manipulated [GBq]
Y-90	64.05 h	98
Re-186	3.71 d	0.09
Lu-177	6.65 d	19
I-131	8.02 d	176
Ra-223	11.43 d	0.08

Sources radioactives	
Radionuclides	Half-life
Ge-68	270.95 d
Co-57	271.79 d
Cs-137	30.08 y

Durant la production nous obtenons:

- Une grande variété de radionucléides à l'intérieur des matériaux dans et autour du cyclotron (interaction des protons and neutrons)
- Relâchement de gaz radioactifs (à l'intérieur du bunker et des hotcell)

A un moment donné, ces radiopharmaceutiques, sources radioactives et matériaux activés devront être considérés comme déchets radioactifs (liquide, solide ou gaz) !

Comment pouvons-nous les gérer en toute sécurité pour les travailleurs et l'environnement ?

Art. 108 Définition

Les déchets radioactifs sont des matières radioactives qui ne seront pas réutilisées et qui ne contiennent pas que des NORM.

Art. 109 Réutilisation

¹ On entend par réutilisation un usage concret planifié d'une matière radioactive dans le cadre d'une activité autorisée et qui interviendra dans les trois années qui suivent la dernière utilisation. L'autorité de surveillance peut accorder une prolongation du délai.

Que dit la réglementation suisse ? 2)

Selon l'ORaP – art. 106, un objet est considéré comme non-radioactif si:

1. Sa contamination de surface **est inférieure** aux **limites de contamination CS**
et
2. Le débit de dose après déduction du bruit de fond **est inférieur** à **0.1 µSv/h @ 10 cm**
et
3. L'activité spécifique ou absolue **est inférieure** aux **limites de libération LL**



Ces 3 conditions doivent être satisfaites avant que l'objet soit éliminé

Les objets contiennent, en général, une grande variété de radionucléides, on peut donc introduire:

$$S_{LL} = \sum_i \frac{a_i}{LL_i} > 1$$

À déterminer

Définies dans l'ordonnance (annexe 3), basées sur *Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards*

S_{LL} : Règle de sommation

a_i : Activité du radionucléide i

LL_i : Limite de libération du radionucléide i

Aux HUG, nous sommes autorisés à éliminer (OFSP) jusqu'à **10 kg.LL par semaine** pour l'hôpital entier

Que dit la réglementation suisse ? 3)

Art. 117 Stockage pour décroissance

¹ Les déchets radioactifs contenant uniquement des radionucléides de période égale ou inférieure à 100 jours doivent chaque fois que cela est possible être maintenus dans les entreprises qui les ont produits jusqu'à ce que leur activité ait décréu à un niveau qui permet de les libérer selon l'art. 106 ou de les rejeter dans le cadre des quantités autorisées conformément à l'art. 112, al. 2.

² Les déchets radioactifs dont l'activité, du fait de leur décroissance radioactive, atteindra au plus tard 30 ans après la fin de l'utilisation de la matière d'origine un niveau permettant leur libération conformément à l'art. 106 ou leur valorisation selon l'art. 115 doivent être entreposés jusqu'à cette date, si aucune solution alternative globalement plus avantageuse pour l'être humain et l'environnement n'est disponible. Ils doivent être séparés de ceux qui ne remplissent pas cette condition.

³ Durant leur décroissance, les déchets visés aux al. 1 et 2 doivent être:

Art. 17 Air vicié

² L'évacuation de l'air vicié à l'extérieur doit se faire dans le respect des limites d'immission fixées à l'art. 24, al. 1, ORaP ou de la contrainte de dose liée à la source indiquée à l'art. 13, al. 3, ORaP aux endroits accessibles.

3.5 Restitution au fournisseur pour réutilisation

Avant l'acquisition ou en principe avant l'élimination de sources radioactives scellées ne pouvant pas être éliminées après utilisation selon les points 3.1 à 3.4 de cette directive, il y a lieu d'envisager une restitution au fournisseur. Dans le cas de sources hautement radioactives, le titulaire de l'autorisation



Concerne tous les déchets radioactifs provenant des examens diagnostiques et thérapeutiques



Concerne les déchets activés avec des demi-vies longues provenant du cyclotron



Concerne les gaz radioactifs produits pendant l'utilisation du cyclotron



Concerne les sources radioactives scellées

ORaP

OUMR

Directive

Outils disponibles pour la gestion des déchets radioactifs aux HUG



Débitmètre



Moniteur de
contamination



Spectrometre γ
HP-Ge/NaI



Simulation
Monte Carlo

Thérapie

Y-90 ($T_{1/2}$: 64.05 h; LL: 1000 Bq/g)
Re-186 ($T_{1/2}$: 3.71 d; LL: 1000 Bq/g)
Lu-177 ($T_{1/2}$: 6.65 d; LL: 100 Bq/g)
I-131 ($T_{1/2}$: 8.02 d; LL: 10 Bq/g)
Er-169 ($T_{1/2}$: 9.39 d; LL: 1000 Bq/g)
Ra-223 ($T_{1/2}$: 11.43 d; LL: 10 Bq/g)

Diagnostique

Rb-82 ($T_{1/2}$: 1.25 min; LL: 10 Bq/g)
N-13 ($T_{1/2}$: 9.97 min; LL: 100 Bq/g)
Ga-68 ($T_{1/2}$: 67.71 min; LL: 10 Bq/g)
F-18 ($T_{1/2}$: 109.77 min; LL: 10 Bq/g)
Tc-99m ($T_{1/2}$: 6.01 h; LL: 100 Bq/g)
In-111 ($T_{1/2}$: 2.80 d; LL: 10 Bq/g)
I-123 ($T_{1/2}$: 13.22 d; LL: 100 Bq/g)
I-125 ($T_{1/2}$: 59.49 d; LL: 100 Bq/g)

Courtes et moyennes
demi-vies

Déchets solides et
liquides

Production

N-13 ($T_{1/2}$: 9.97 min; LL: 100 Bq/g)
F-18 ($T_{1/2}$: 109.77 min; LL: 10 Bq/g)
Autres radio métaux (up to 13.5 y LL: down to 0.1 Bq/g)

Courtes, moyennes **et longues** demi-
vies dû à l'utilisation du cyclotron
(e.g. **activation des matériaux**)

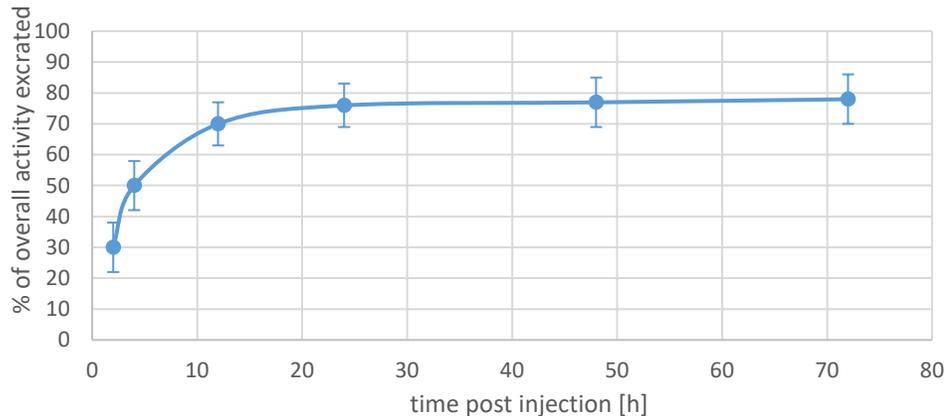
Déchets solides,
liquides et gazeux

Nous pouvons séparer les déchets radioactifs en deux catégories :

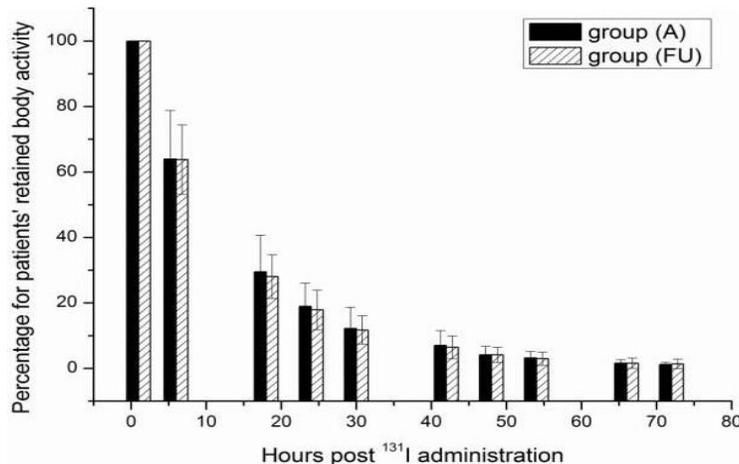
1. Les eaux usées hautement radioactives provenant de thérapie
2. Les déchets radioactifs liquides et contaminés provenant des activités de thérapie et diagnostique (draps, gants, aiguilles, seringues, restant de flacons...)

A cause de leur demi-vies courtes ou moyennes, l'ensemble de ces déchets devront être stockés dans des zones tampons jusqu'à ce qu'ils aient suffisamment décréut.

Excreted Lu-177 as function of p.i time



Plot produced based on *External radiation exposure, excretion, and effective half-life in ¹⁷⁷Lu-PSMA-targeted therapies* data



Source: *The Study of External Dose Rate and Retained Body Activity of Patients Receiving ¹³¹I Therapy for Differentiated Thyroid Carcinoma*

Aux HUG nous effectuons des traitements à l'I-131 et nous avons récemment démarré les traitements à base de Lu-177 (RLT).

- Une grande quantité de radioactivité se retrouve dans les urines (**environ 70 à 90 % 72 h p.i.**). Les sanitaires doivent être connectés à des cuves de rétention.
- Limites de rejet aux HUG (autorisé par l'OFSP - différent pour chaque hôpital):
 - Lu-177: 600 MBq/semaine
 - I-131: 52 MBq/semaine
- 4 cuves de 4000 L retiennent la radioactivité jusqu'à ce que les limites soient atteintes, et l'eau puisse être rejeté.
- Une cuve est pleine après (150 L / patient / jour):
 - 6 administrations de I-131
 - 12 administrations de Lu-177-PSMA

Du à la forte demande pour les thérapies au Lu-177, des projets sont en cours pour étendre notre capacité de rétention

Méthodes pour la libération des déchets

Eaux usées de thérapie



Mesure par spectrométrie gamma de
l'activité d'un échantillon de 1 L
provenant de la cuve



Relâchement si activité < limite
Environ 5-7 semaines une fois la cuve pleine

$$A_{sample} \cdot V_{tank} = A_{tank}$$

Déchets contaminés de thérapie
et diagnostique



Mesure du taux de comptage



Relâchement si taux de comptage au
niveau du bruit de fond



Thérapie

Y-90 ($T_{1/2}$: 64.05 h; LL: 1000 Bq/g)
Re-186 ($T_{1/2}$: 3.71 d; LL: 1000 Bq/g)
Lu-177 ($T_{1/2}$: 6.65 d; LL: 100 Bq/g)
I-131 ($T_{1/2}$: 8.02 d; LL: 10 Bq/g)
Er-169 ($T_{1/2}$: 9.39 d; LL: 1000 Bq/g)
Ra-223 ($T_{1/2}$: 11.43 d; LL: 10 Bq/g)

Diagnostique

Rb-82 ($T_{1/2}$: 1.25 min; LL: 10 Bq/g)
N-13 ($T_{1/2}$: 9.97 min; LL: 100 Bq/g)
Ga-68 ($T_{1/2}$: 67.71 min; LL: 10 Bq/g)
F-18 ($T_{1/2}$: 109.77 min; LL: 10 Bq/g)
Tc-99m ($T_{1/2}$: 6.01 h; LL: 100 Bq/g)
In-111 ($T_{1/2}$: 2.80 d; LL: 10 Bq/g)
I-123 ($T_{1/2}$: 13.22 d; LL: 100 Bq/g)
I-125 ($T_{1/2}$: 59.49 d; LL: 100 Bq/g)

Courtes et moyennes
demi-vies

Déchets liquides et
solides

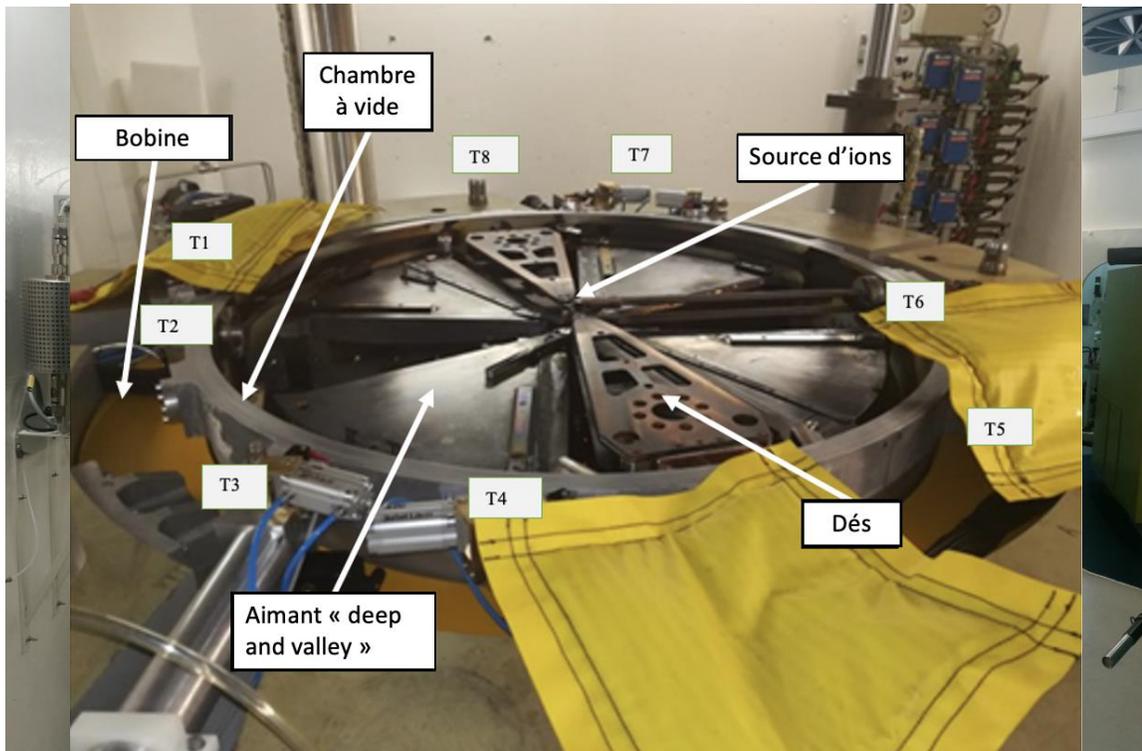
Production

N-13 ($T_{1/2}$: 9.97 min; LL: 100 Bq/g)
F-18 ($T_{1/2}$: 109.77 min; LL: 10 Bq/g)
Autres radiométaux (up to 13.5 y LL: down to 0.1 Bq/g)

Courtes, moyennes **et longues** demi-
vies dû à l'utilisation du cyclotron
(e.g. activation des matériaux)

Déchets liquides,
gazeux et solides

Le cyclotron des HUG



- Cyclotron IBA cyclone 18/9, installé en 1999
- Accélère un faisceau de protons à 18 MeV avec une intensité jusqu'à 100 μA
- 8 ports de cible pour la production de radio-isotopes
 - 6 installés : 3 pour ^{18}F , 2 pour ^{13}N et 1 cible solide
- Les radionucléides suivants sont/étaient produits:
 - ^{18}F , ^{13}N , ^{11}C , ^{64}Cu , ^{15}O
- Pour le moment, 4 journées de production par semaine (pour les patients et le développement)

Le cyclotron placé à l'intérieur d'un bunker (murs en béton de 2 m d'épaisseur)

Types de déchets en fonction de l'étape de production

Typical radionuclides produced (only half life > 10 days) (non exhaustive)

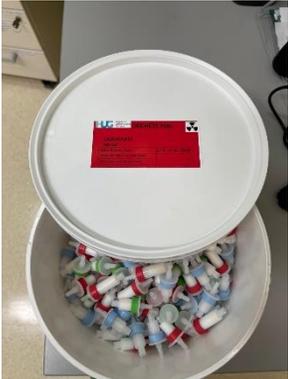
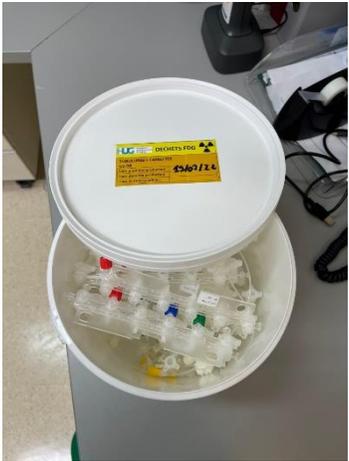
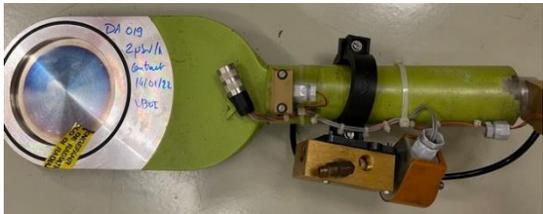
Activated waste				Contaminated waste				Clinical waste			
RN	Half-life	Disintegration	LL [Bq/g]	RN	Half-life	Disintegration	LL [Bq/g]	RN	Half-life	Disintegration	LL [Bq/g]
^{110m} Ag	249 d	β ⁻ /γ	0.1	⁵⁴ Mn	312 d	β ⁻ /γ	0.1	¹⁸ F	109 min	β ⁺	10
¹⁵² Eu	13.5 y	β ⁻ /γ	0.1	⁵⁶ Co	5.3 y	β ⁻ /γ	0.1	⁶⁸ Ga	67 min	β ⁺	10
⁵⁴ Mn	312 d	β ⁻ /γ	0.1	⁵⁷ Co	271.8 d	β ⁻ /γ	1	¹³ N	9.97 min	β ⁺	100
⁶⁰ Co	5.3 y	β ⁻ /γ	0.1	⁵⁸ Co	70.9 d	β ⁻ /γ	1				
⁶⁵ Zn	243.7 d	β ⁻ /γ	0.1	¹⁸⁴ Re	38.0 d	β ⁻ /γ	1				
²² Na	2.6 y	β ⁻ /γ	0.1	^{95m} Tc	61.0 d	β ⁻ /γ	1				
⁵⁷ Co	271.8 d	β ⁻ /γ	1	¹⁸¹ W	121.2	β ⁻ /γ	10				
⁵⁸ Co	70.9 d	β ⁻ /γ	1	¹⁸³ Re	70.0 d	β ⁻ /γ	10				
⁵⁹ Fe	44.6 d	β ⁻ /γ	1	⁵¹ Cr	27.7 d	β ⁻ /γ	100				
⁵¹ Cr	27.7 d	β ⁻ /γ	100	^{97m} Tc	90.1 d	β ⁻ /γ	100				
⁶³ Ni	100.1 y	β ⁻	100	⁵⁵ Fe	44.6 d	β ⁻ /γ	1000				
⁵⁵ Fe	2.7 y	β ⁻ / low γ	1000	⁴⁹ V	330.0 d	β ⁻ /γ	10000				

1)



S

Types de déchets



4 approches différentes pour la gestion des déchets radioactifs

- I. **Déchets gazeux:** relâchement provenant du cyclotron et des hotcells
- II. **Déchets de production:** cassettes utilisées pour la synthèse des radiopharmaceutiques
- III. **Déchets de maintenance:** fenêtres de cibles
- IV. **Démantèlement de parties du cyclotron non utilisées:** bobines du cyclotron

I. Déchets gazeux

Rappels: les relâchements de gaz radioactifs ont lieu lors:

- De l'utilisation du cyclotron (relâchement à l'intérieur du bunker)
- Du transfert de la radioactivité dans les hotcells (relâchement dans les hotcells)

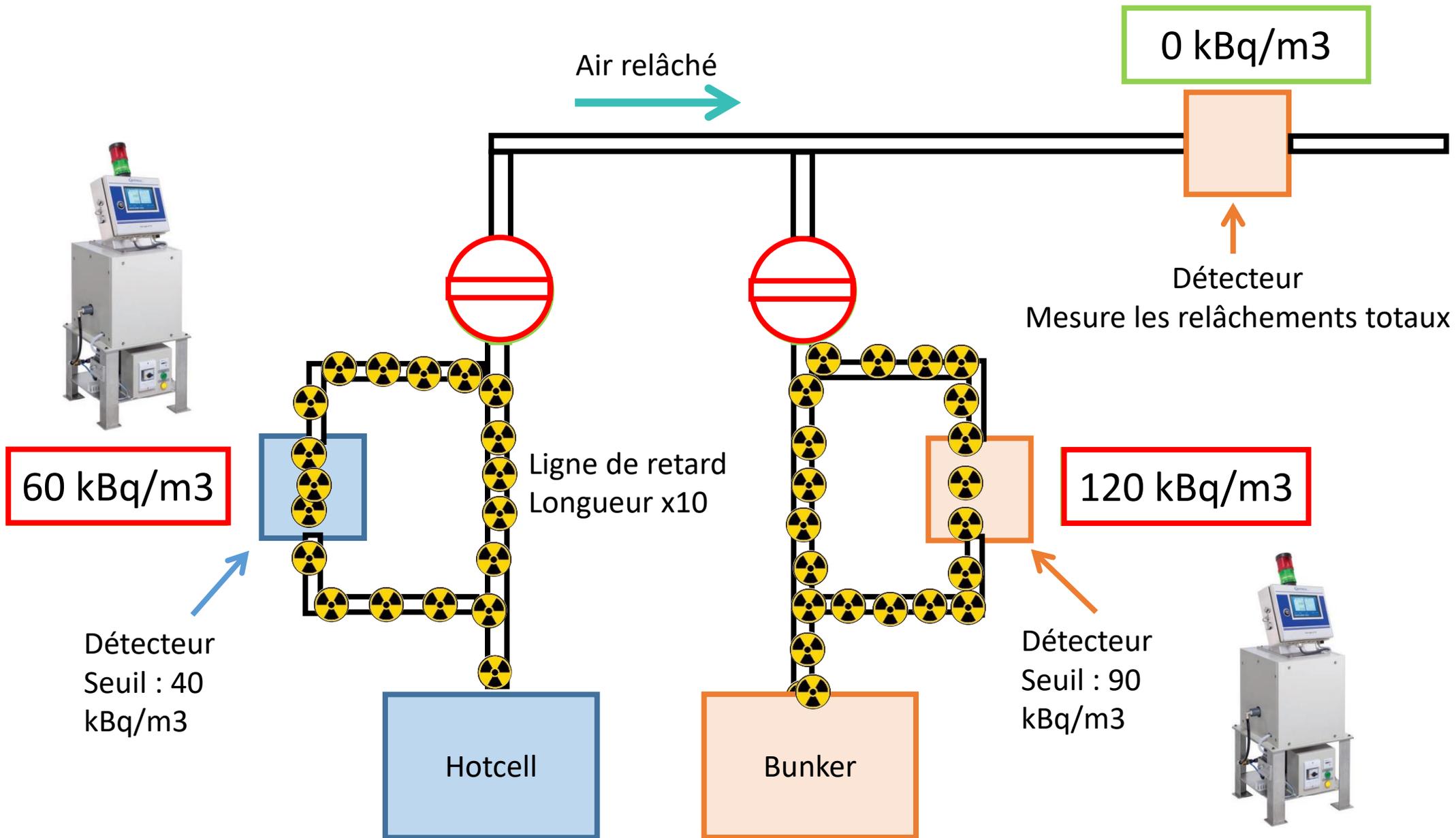
Les limites de relâchements sont calculées à partir de:

- La détermination du point critique
- Du modèle de dispersion de la radioactivité
- Des conditions météorologiques à l'endroit défini
- Les limites d'imission ***L'air***
- L'activité volumique moyenne au point de relâchement

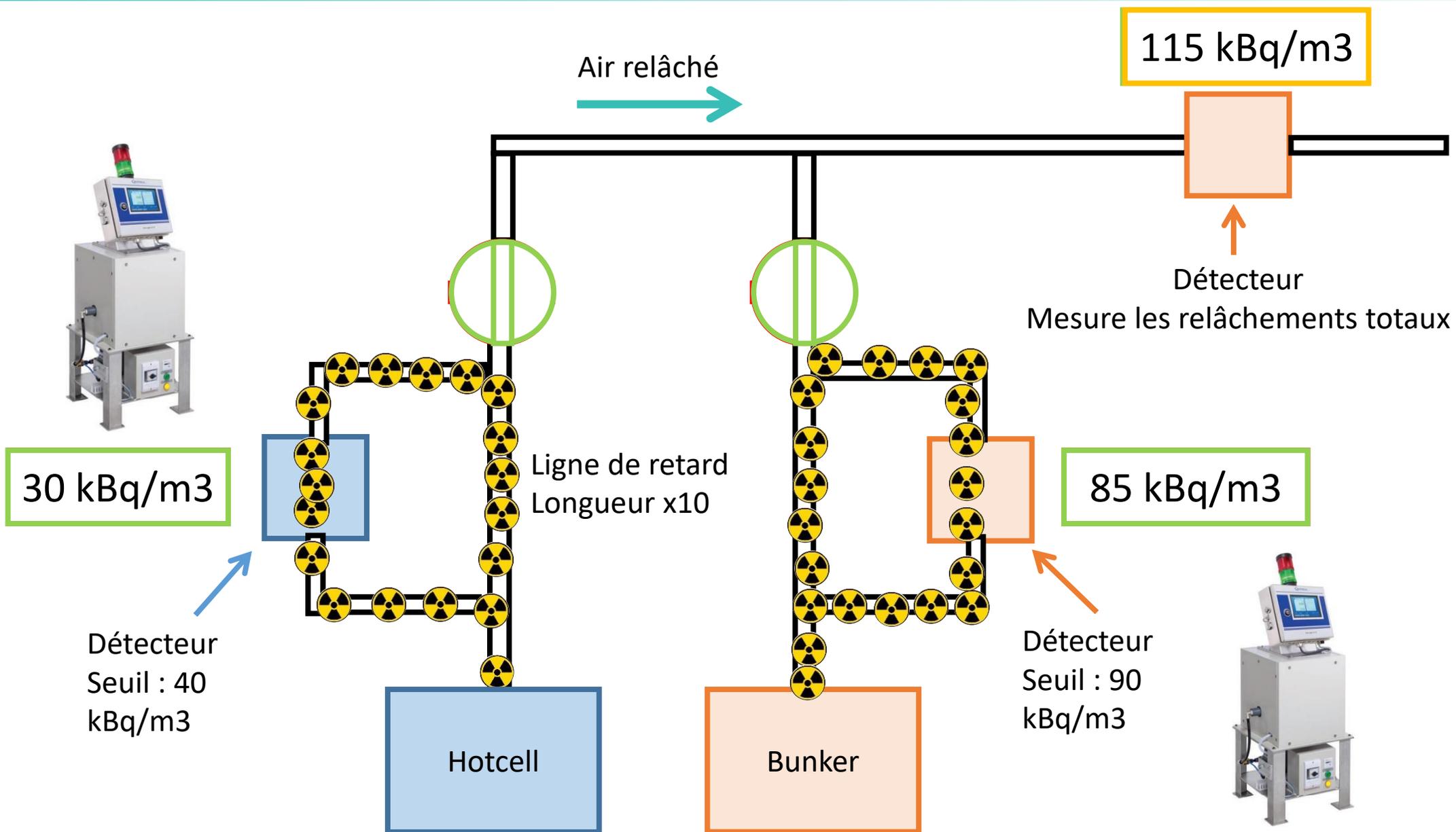
Aux HUG nous sommes autorisés à relâcher :

- 5 GBq / semaine
- 263 GBq / an

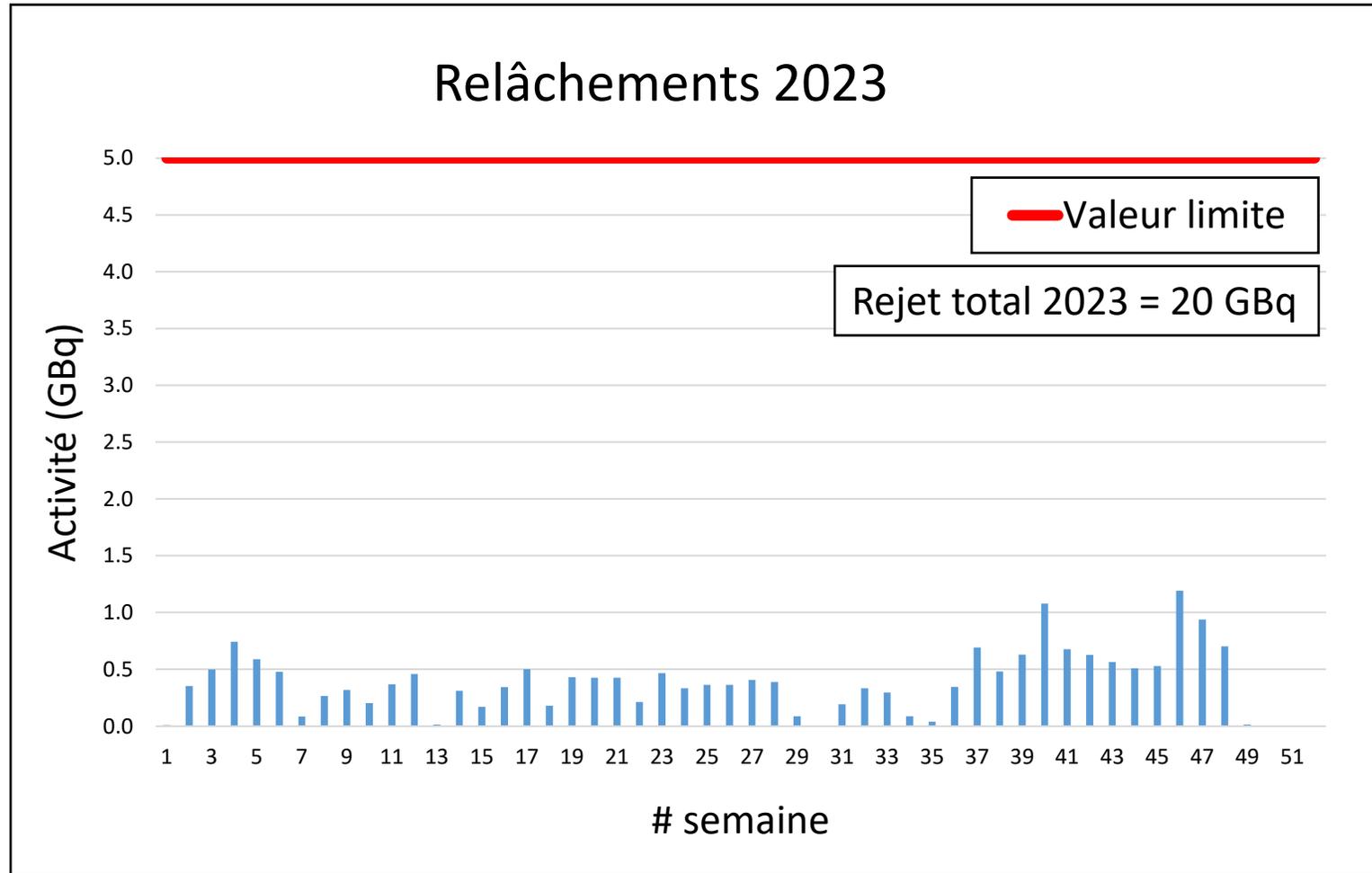
Déchets gazeux – Système de suivi



Déchets gazeux – Système de suivi



Suivi des relâchements 2023



II. Déchets de production

Déchets de production FDG



Détermination du contenu en radionucléide

Simulation de l'interaction
du faisceau de proton avec
la fenêtre de cible →
Détermination du *nuclide*
vector (α , β , γ)



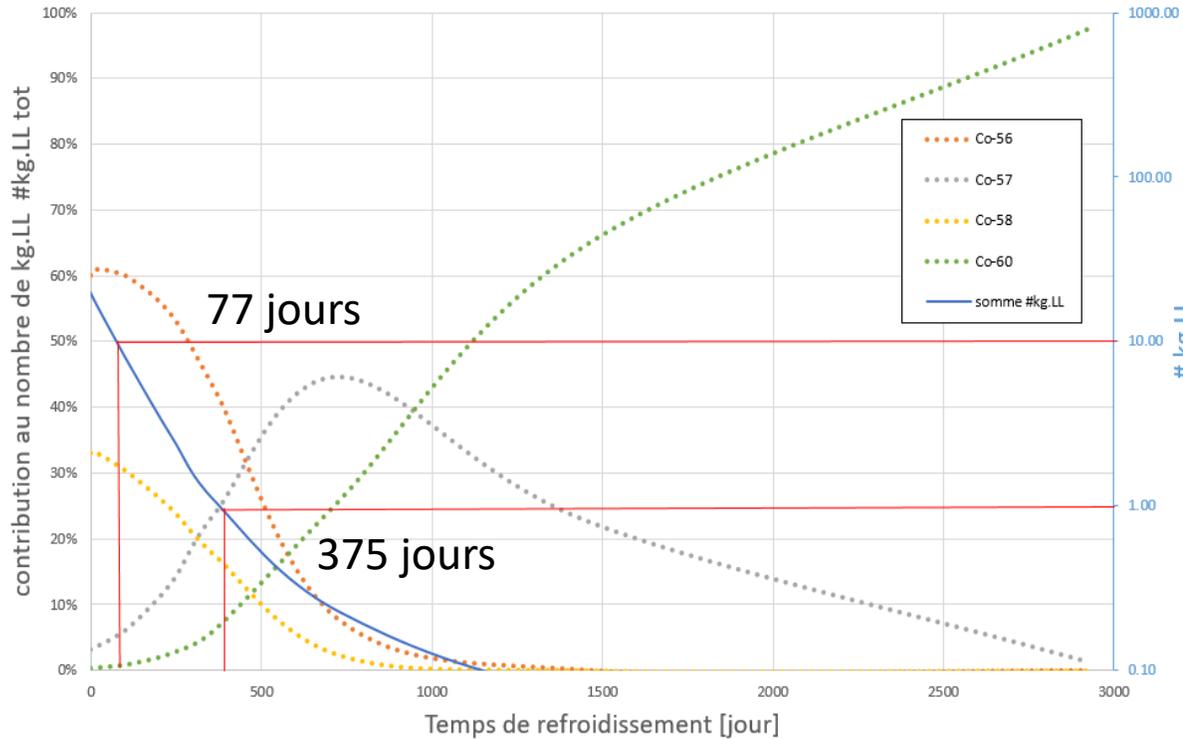
Création d'une bibliothèque pour
l'identification des radionucléides

Mesure avec un
spectromètre γ
→ quantification des
activités des
émetteurs γ

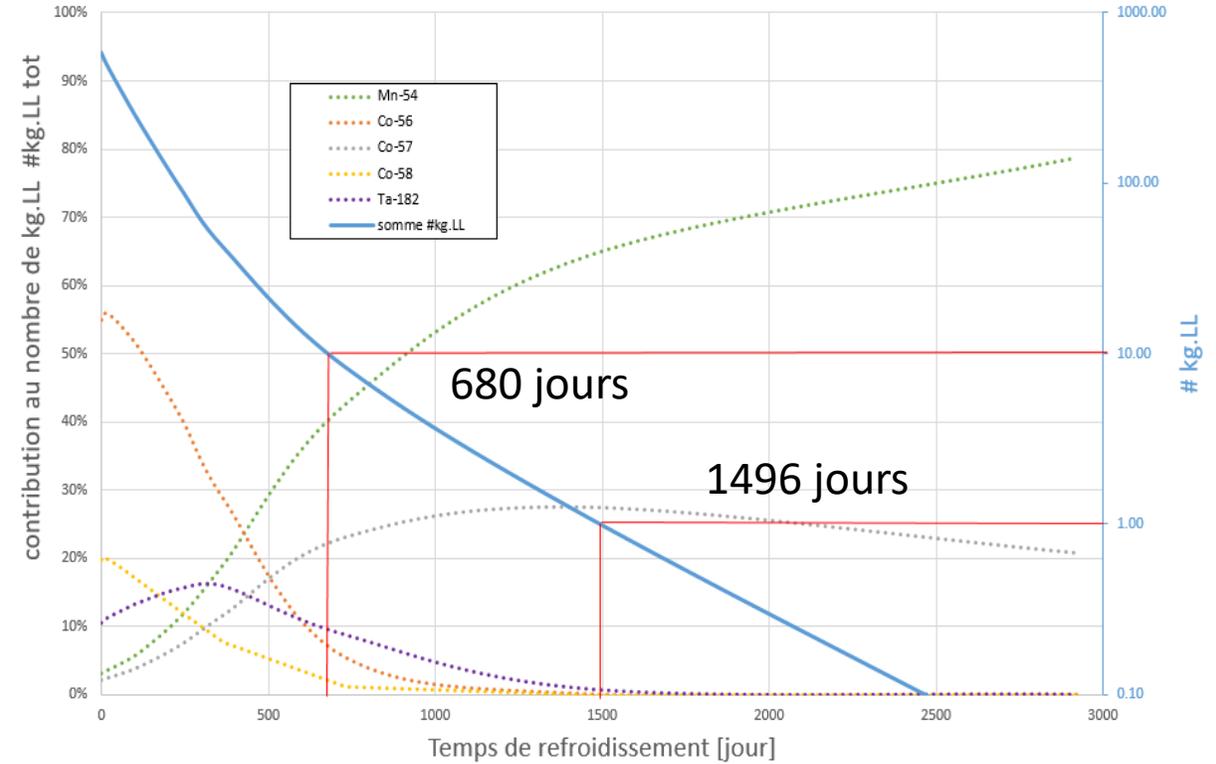
Résultats de caractérisation

Radionuclides	Half-life [j]	LL [Bq/g]	Tubing	Filters
			Activity [Bq]	Activity [Bq]

Tubulures

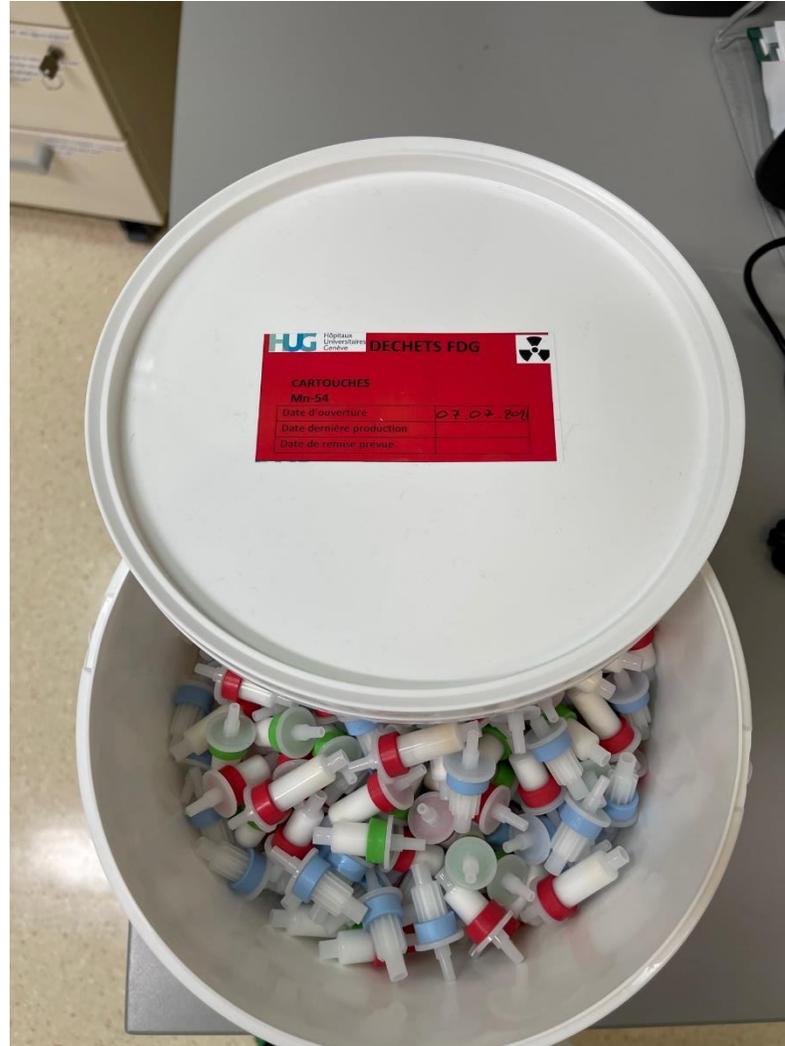
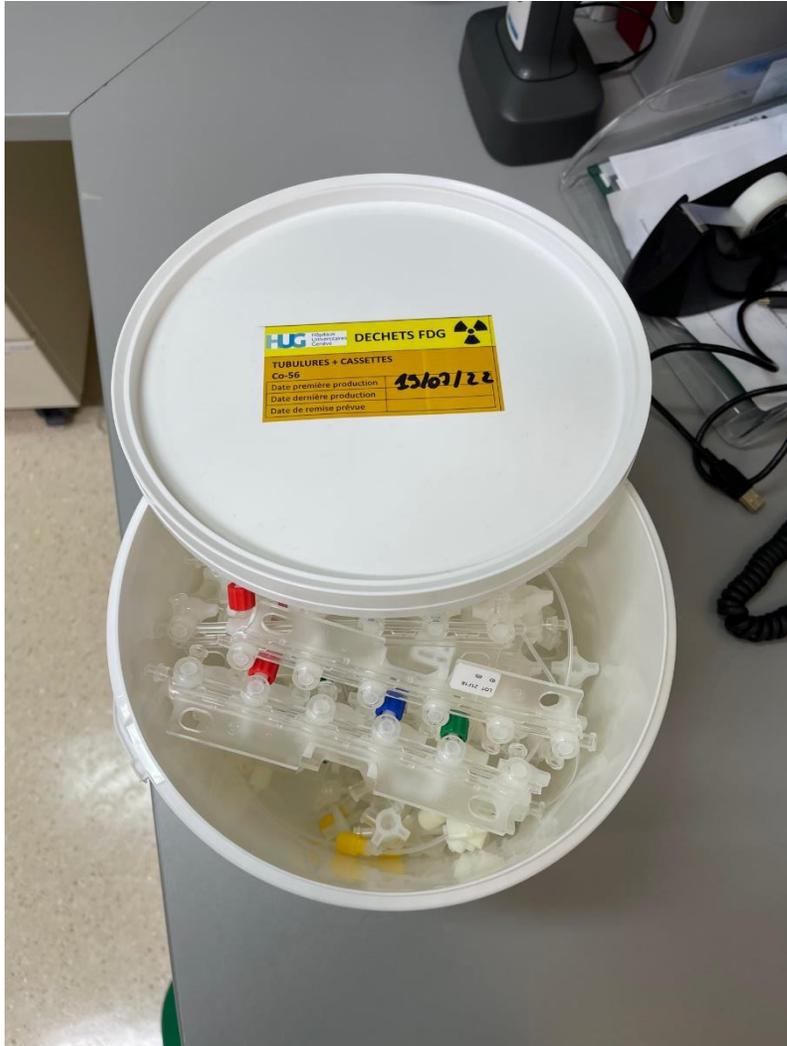


Filtres



Est-ce que ces éléments peuvent être rejetés ? Si oui, après combien de temps ?

Gestion standardisée



- Les éléments de cassette sont stockés en fonction de leur contenu en radionucléides dans différents sceaux
- Stockés jusqu'à ce que 1 kg.LL soit atteint (entre quelques jours et plusieurs mois)

III. Déchets de maintenance – fenêtre de cible



Fenêtre de cible
(Havar, $e=35\ \mu\text{m}$, $d=43\ \text{mm}$)

Havar	
Element	Wt %
Cobalt	42.00%
Chrome	19.50%
Nickel	12.70%
Tungsten	2.70%
Molybdenum	2.20%
Manganese	1.60%
Carbon	0.20%
Iron	Balance

Method for the determination of the radionuclides and their activities

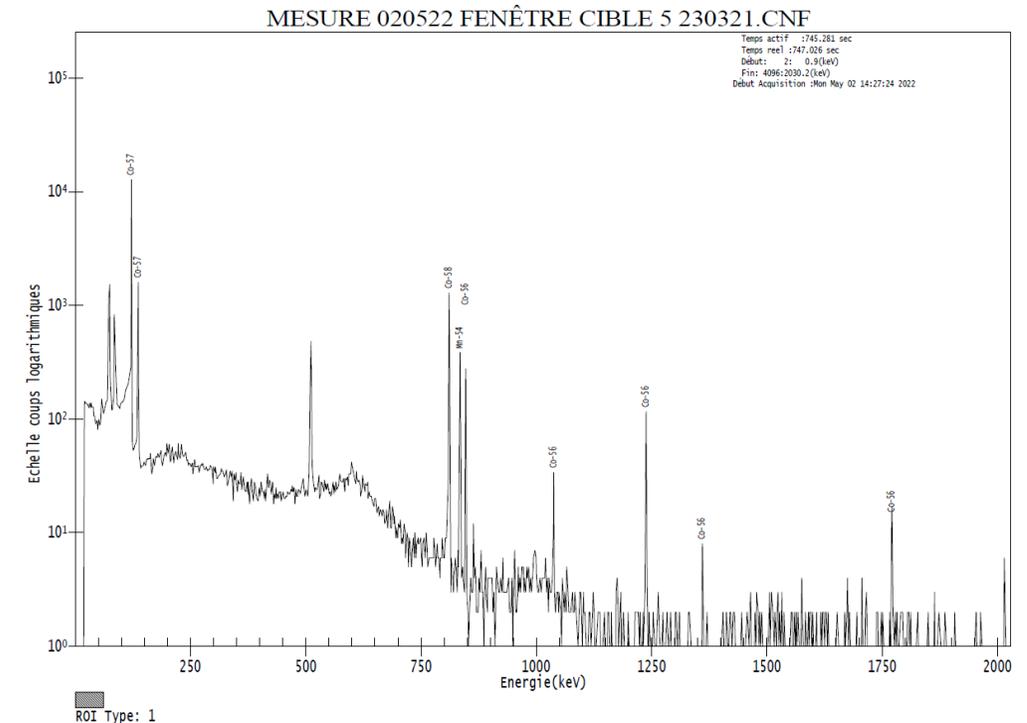
Simulation de l'interaction
du faisceau de proton avec
la fenêtre de cible →
Détermination du *nuclide*
vector (α , β , γ)



Création d'une bibliothèque pour
l'identification des radionucléides

Mesure avec un
spectromètre γ
→ quantification des
activités des
émetteurs γ

Radionuclides	Demi-vie [j]	Activité [Bq]
⁴⁹ V	338.0	< Detection Limit (DL)
⁵¹ Cr	27.7	< DL
⁵² Mn	5.6	$7.2 \times 10^3 \pm 1.9 \times 10^3$
⁵⁴ Mn	312.2	$6.4 \times 10^5 \pm 3.4 \times 10^4$
⁵⁵ Fe	996.4	Difficult To Measure
⁵⁶ Co	77.3	$4.1 \times 10^6 \pm 2.1 \times 10^5$
⁵⁷ Co	271.8	< DL
⁵⁸ Co	70.8	$3.0 \times 10^7 \pm 1.6 \times 10^6$
⁹⁶ Tc	4.3	< DL
¹⁸¹ W	121.2	< DL
¹⁸² Re	2.7	< DL
¹⁸³ Re	70.0	< DL
¹⁸⁴ Re	38.0	< DL
^{95m} Tc	61.0	< DL
^{97m} Tc	90.1	< DL
kg.LL		77407



11 ans de refroidissement nécessaire avant élimination

**Débit de dose au contact après
retrait de la cible : plusieurs mSv/h**



**Plus d'une centaine de
fenêtres doivent être
caractérisées !**



Après une discussion avec les cyclotrons en suisse un problème a été identifié quant à la caractérisation de ces fenêtres:

- Les fenêtres s'accumulent et ne sont pas caractérisés
- Tous les centres ne possèdent pas de spectromètre + problème collaborateur pouvant faire ces analyses
- Débit de dose important, exposition du personnel



Objectif

Estimation de l'activité
avec un débit mètre ou
un spectromètre

Les résultats préliminaires sont
encourageants pour avoir une
méthode standardisée

IV. Démantèlement des bobines

Exposition du problème



Les bobines ont été retirées du cyclotron (fuite d'eau) en décembre 2015, après 15 ans d'utilisation



Sont-elles radioactives ?
Si oui, quelles parties ?



2.4 T de matériaux (principalement cuivre)
doivent être caractérisés radiologiquement

La détermination des produits d'activation est effectuée grâce à la complémentarité des outils suivants :

Mesure avec
débitmètre et
moniteur de
contamination

Prise d'échantillon

- Identification des radionucléides impossible à mesurer avec la spectrométrie gamma (β pur, α).
- Aide à la prise de décision pour de nouveaux échantillons
- Interpolation (3D)

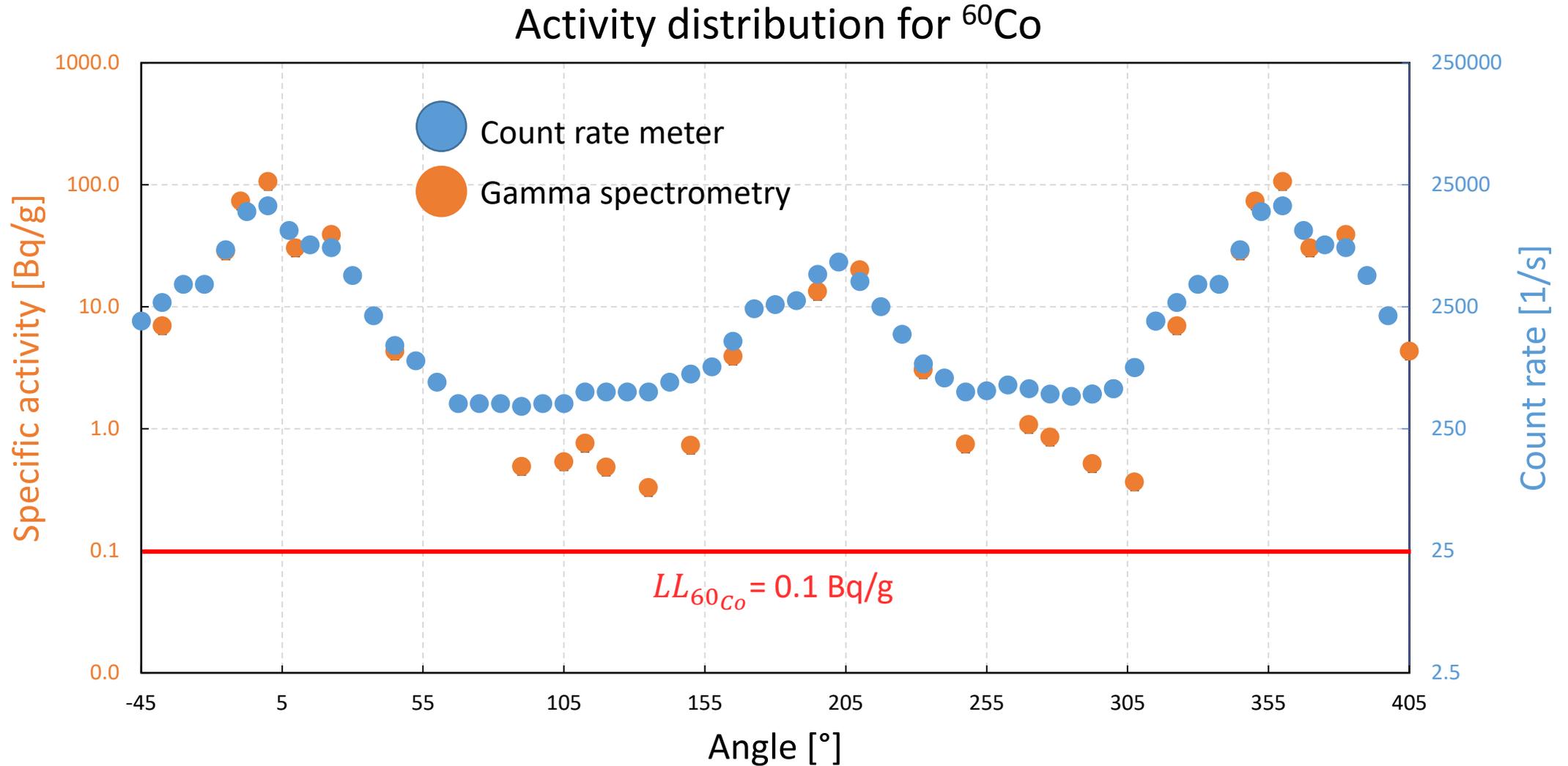
Mesure avec
spectromètre γ

- Nécessaire pour validation
→ Optimisation du modèle de simulation

Simulation
Monte-Carlo

Résultats → le stockage aux HUG pour **30 ans** autorisé par l'OFSP –
avec contrôle annuel du débit de dose

Spectrométrie gamma vs taux de comptage



La complémentarité des outils montre que le moniteur de contamination n'est pas suffisant pour atteindre la limite de libération

Merci pour votre attention 😊