

ISSN - 0250 - 5010

ANNALEN
VAN
DE BELGISCHE VERENIGING
VOOR
STRALINGSBESCHERMING

VOL. 35, N° 1, 2010

1^{er} trim. 2010

Driemaandelijkse periodiek
1050 Brussel 5

Périodique trimestriel
1050 Bruxelles 5

ANNALES
DE
L'ASSOCIATION BELGE
DE
RADIOPROTECTION

Hoofdredacteur

Mr C. Steinkuhler
Rue de la Station 39
B- 1325 Longueville

Rédacteur en chef

Redactiesecretariaat

Mme Cl. Stiévenart
Av. Armand Huysmans 206, bte 10
B- 1050 Bruxelles - Brussel

Secrétaire de Rédaction

Publikatie van teksten in de Annalen gebeurt onder volledige verantwoordelijkheid van de auteurs.

Nadruk, zelfs gedeeltelijk uit deze teksten, mag enkel met schriftelijke toestemming van de auteurs en van de Redactie.

Les textes publiés dans les Annales le sont sous l'entière responsabilité des auteurs.

Toute reproduction, même partielle, ne se fera qu'avec l'autorisation écrite des auteurs et de la Rédaction.

Ce numéro contient le texte lauréat du Young Scientists Award (IRPA) présenté lors de la réunion organisée par l'Association belge de Radioprotection à Bruxelles, le 11 décembre 2009 et la présentation du 50^e anniversaire de la Nederlandse Vereniging voor Stralingshygiëne.

Dit nummer bevat de bijdrage van de IRPA Young Scientists Award laureaat voorgesteld op de vergadering van de Belgische Vereniging voor Stralingsbescherming in Brussel op 11 december 2009 en de Nederlandse Vereniging voor Stralingshygiëne lustrum viering.

SOMMAIRE

Reduction of radioxenon emissions from radiopharmaceutical facilities – a pilot study.

BRAEKERS D., CAMPS J., PARIDAENS J., SAEY P.R.J.,
VAN DER MEER K.

p. 1

Rond vijftig jaar NVS

BOERSMA H. F.

p. 13

INHOUD

REDUCTION OF RADIOXENON EMISSIONS FROM RADIOPHARMACEUTICAL FACILITIES – A PILOT STUDY.

**Braekers, Damien¹; Camps, Johan¹; Paridaens, Johan¹;
Saey, Paul R.J.²; van der Meer, Klaas¹**

¹ Belgian Nuclear Research Centre (SCK•CEN), BELGIUM

² Vienna University of Technology,
Atomic Institute of the Austrian Universities, AUSTRIA

Abstract

The Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) is building an International Monitoring System (IMS) in order to verify that the state signatories of the treaty fulfil their commitments of not performing any kind of nuclear explosion. The atmospheric noble gas monitoring is a part of this verification system and focuses on the measurement of short-lived radioxenon isotopes in the atmosphere. In order to improve the sensitivity of the IMS noble gas network, the radioxenon background should be decreased. Previous research has shown that a very limited number of radiopharmaceutical facilities are responsible for the major part of the radioxenon background [Saey 2009]. In addition xenon routine releases from such facilities can hide the release of radiological more important nuclides like iodine during on- or off-site gas monitoring. Reduction of radioxenon release will consequently decrease the global background and enhance the basic safety of such nuclear facilities.

This study reports on several techniques that could be installed in a radioisotope production facility to reduce the discharge of radioxenon in the atmosphere. This pilot study was centred on the Institute for Radioelements (IRE) facility in Fleurus, Belgium – the worldwide third largest Mo-99 producer. Each production step was analysed to determine the amount and the isotopic composition of a possible xenon release. Many techniques (e.g. adsorption on solid materials, cryogenic processes...) will be discussed in terms of performance and practical aspects for the filtration and/or delay of xenon fission gas emissions.

It has been demonstrated in this work that significant reductions of radioxenon atmospheric discharges from Mo-99 production facilities are theoretically possible. Nevertheless it requires a complete inventory of each pathway of xenon release during separation and purification steps of medical radionuclides.

Introduction

The Comprehensive Nuclear-Test-Ban-Treaty Organisation (CTBTO) is operating for verification purposes an International Monitoring System (IMS) based on four different techniques (seismic, hydroacoustic, infrasound and radionuclide (particulate and noble gas) measurements) to detect if an explosion in nature is nuclear or not. The objective of the IMS is, according to the CTBT: "...At least 90% detection capability within 14 days after a nuclear explosion in the atmosphere, underwater or underground for a 1 kton nuclear explosion". The global monitoring of noble gases measures the activity concentration in air of four radioxenon isotopes (Xe-133, Xe-133m, Xe-135 and Xe-131m) with a limit of detection below 1mBq/m³ for Xe-133 [Saey 2007]. However the global radioxenon background which has mainly an anthropogenic origin (nuclear power plants, hospitals and radiopharmaceutical facilities) is in certain areas up to 2 orders of magnitude above the detection limit of the IMS network. It has been demonstrated that the largest contribution to the radioxenon global background by far is coming from the four most important medical radioisotopes production plants that are producing 95% of the Mo-99 world demand by neutron irradiation of highly enriched uranium [Saey 2009]. Mo-99 is the precursor of Tc-99m which is used in 80% of the medical applications with radioisotopes involved world-wide. By consequence, reduction of the radioxenon discharges from these radiopharmaceutical production plants will decrease the global radioxenon background and thus increase considerably the sensibility of the noble gas monitoring network.

On the other hand reducing the radioxenon routine discharges of such kind of nuclear facilities can have another interesting impact regarding the nuclear safety of these installations. Even if the radioxenon nuclides are not important from the radiological point of view, the huge noble gas activity released can mask other more dangerous nuclides such as iodine during on- or off-site gas monitoring. Reduction of radioxenon emissions will consequently decrease the global background and enhance the basic safety of such nuclear facilities in case of an accident but also during the routine monitoring.

This pilot study of the reduction of radioxenon discharges coming from a radiopharmaceutical facility was focused on the case of the Institute for Radioelements at Fleurus in Belgium which is one of the largest Mo-99 producers.

Review of the noble gases retention-scrubber techniques

Xenon is part of the group of noble gases - its interactions with other elements or matter are, therefore, very limited. Except a few uncommon chemical reactions with strong reagents, xenon is chemically “inert”. Xenon interactions with matter or other elements are limited to the van der Waals forces (more specific dispersion or London forces). Consequently only physical separation processes have been proposed and investigated for the recovery of radioxenon from gaseous effluents like adsorption on solid material, cryogenic distillation or diffusion through membranes. The cryogenic distillation process has already been studied extensively and tested for the treatment of krypton and xenon present in the off-gases coming from a nuclear waste reprocessing plant [Collard et al. 1982]. This technique is said to be promising, however it has been rejected because of the higher operational costs and the potential fire hazard caused by ozone accumulation [Geens et al. 1985]. Gas diffusion through thin polymer membranes technology has been already studied in the nuclear sciences field for the purification of a reactor building contaminated air with radioactive noble gases [Stern et al. 1980]. Despite the high efficiency of a multi-stage permeation system, this technique hasn't been selected because of its lower throughput and the sensibility of the thin membranes to the chemically reactive substances that could be present in the off-gas (e.g. iodine, volatile acids, nitrogen oxides...).

The adsorption process on activated carbons (A.C.) or zeolites is an easy-to-install and reliable process with limited expected operational costs. Several authors have already studied and tested this technique for the treatment of radioactive noble gases effluents coming from different nuclear installations [Moeller et al. 1981, Mondino et al. 2002]. Despite the fire hazard in presence of NO_x , activated carbons are a very effective type of adsorbents for the retention of xenon until the radioactive decay has reduced sufficiently the radioxenon activity at the output of the system. The off-gas from a radiopharmaceutical facility contains several radioactive gases (Xe, Kr, I and Rb) as well as non-radioactive gases (Xe, Kr, N_2 , O_2 , NO_x , CO_2 , iodine and water vapour) that requires a multi component adsorption approach [Munakata 1999]. Moreover, a pre-treatment of the carrier gas will be necessary in order to remove the most important impurities (water vapour, iodine and carbon dioxide) that could interfere with xenon for the adsorption. Noble gas adsorption depends mainly on several parameters as

nature and flow rate of carrier gas, temperature and pressure that can be optimized to obtain the maximal retention time for radioxenon. Finally, xenon breakthrough curve models taking into account the radioactive decay [Lee et al. 1971, Madey et al. 1981] or with an advanced description of the dynamic process [Munakata et al. 2001] can be used on a set of experimental data to extract some important parameters like effective adsorption coefficient and/or diffusion coefficients. In our study these models have been used as a prediction tool to determine the xenon retention time and the decontamination factor of a given adsorption system with the help from experimental data already published in the literature.

Pilot study → The Institute for Radioelements

The main radionuclides currently produced from irradiated uranium targets (up to 93% of U-235) at the IRE institute are Mo-99, I-131, Xe-133 and Y-90. About 15-20% of the worldwide production of Tc-99m is performed in the Fleurus radiopharmaceutical plant [Kidd 2008].

In order to understand the xenon discharges into the atmosphere by such a facility in detail, a complete analysis of the chemical processes of separation and purification of radionuclides is required. Furthermore, the quantitative simulation of fission products with the ORIGEN code based on target and irradiation specifications can allow us to estimate the amount of radioxenon released for each discharge pathway during the production.

Investigation of the xenon emissions during the radiochemical process of separation and purification of radionuclides

The chemical processes for the recovery and the purification of the medical radioisotopes play a major role in the dynamics of the radioxenon emissions in the atmosphere from a radionuclides production plant. For the clarity of the following discussion, the radioxenon released has been split in two categories:

- Xenon from dissolution is the xenon accumulated in the targets (by direct fission production or decay) at the time of dissolution and released during the targets dissolution step.
- Xenon from decay is coming from the radioactive decay of the other uranium fission product like iodine or tellurium after the dissolution step.

The isotopic ratio of these two categories is different with a important contribution to the xenon total activity of shorter half-life radionuclides (Xe-135 and Xe-135m) for the xenon from dissolution while Xe-133, Xe-

^{133}m and $\text{Xe-}^{131}\text{m}$ account for the major part of the activity released by radioactive decay of the other fission products. The general process taking place in the IRE Institute for the separation and the purification of the medical radioisotopes is based on [Salacz 1985]. The flow sheet is shown in Fig.1 and the critical steps of the process in terms of potential radioxenon emissions are presented in grey.

The target dissolution by a sodium hydroxide solution releases all fission gases that have been produced during the irradiation and the cooling time over a short period of time. There are about 30h between the end of irradiation and the beginning of the dissolution. Radioactive noble gases such as xenon and krypton account for the major part of the gaseous inventory and are carried out of the dissolver by a helium flow to a cryogenic trap at liquid nitrogen temperature for the recovery of Xe-^{133} . An additional charcoal trap also working at low temperature is installed after the first one to reduce the radioxenon discharges in the ventilation system. The trapped xenon is transferred to MDS Nordion for purification and concentration by gas chromatography. The efficiency of the xenon

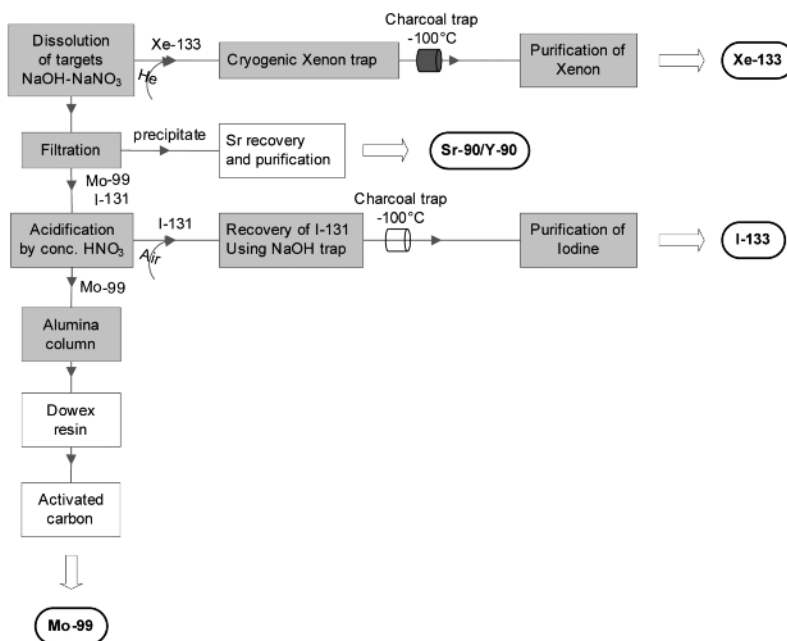


Fig.1. The process flow sheet for the recovery and the purification of Y-90, Mo-99, I-131 and Xe-133 medical radioisotopes at the Institute for Radioelements.

recovery line and the purification step has been estimated by monitoring at 99% [Verboomen et al. 2009].

The precipitate containing the unfissioned uranium and some insoluble fission products like strontium is removed from the liquid phase by filtration. Radioxenon that is still present in the dissolver after the dissolution is released during this step. The next phase of the recovery and the purification of Sr-90 from the solid residue can be considered as free of radioxenon because of the time interval of years between the filtration and the beginning of the strontium production. However the precipitate continues to release radioxenon that is still contained in the solid material but also from the radioactive decay of iodine and tellurium traces.

The oxidation of I⁻ into I₂ by nitric acid induces the release of iodine in the gas phase. Iodine is trapped on a sodium hydroxide trap and stored until its purification. To reduce the discharge of xenon, a small charcoal trap has been installed after the iodine trap. The efficiency of the iodine recovery is maximum 90% [Salacz 1985]. About 10% of the total amount of iodine stays in the liquid phase and will be transferred on the first chromatography column for the continuation of the Mo-99 purification. The time between the end of the acidification and the beginning of the iodine purification is about 7 days for reaching the good isotopic ratio between I-131 and I-133. During this 7-days interval, the radioactive decay of iodine is producing continuously radioxenon (mainly Xe-133 and Xe-131m). The first alumina chromatography column of the Mo-99 purification step is also a potential source of radioxenon emission because iodine and tellurium traces are removed from the bulk solution and sent in the liquid waste tanks.

Finally, the liquid waste tanks and charcoal filters of the ventilation system that are containing iodine which has not been trapped or treated before, continuously produce some radioxenon isotopes by radioactive decay.

The profile of the radioxenon emissions from a radionuclide production facility is very complex because of the diversity of the emission sources in the process with a xenon isotopic ratio changing over the time. Contrary to a nuclear fuel reprocessing plant where the Kr-85 is mostly discharged all at once during the cutting and the dissolution of the fuel rods [Winger et al. 2005], the treatment of off-gases released only during the dissolution won't be good enough for obtaining a significant radioxenon decontamination factor. All the other critical steps in terms of potential radioxenon emissions in the process also have to be taken into account.

Estimation of the xenon source term using Origen code simulation

The quantification of the xenon contained in the uranium targets after irradiation has been done by using the Origen code simulation tool [Bowman et al. 1999]. The irradiation of the high enriched uranium targets used by the IRE is actually performed in three different research reactors: in the BR-2 reactor at Mol (Belgium), in the HFR reactor at Petten (the Netherlands) and in the OSIRIS Reactor at Saclay (France). The average irradiation conditions of the uranium targets in these three facilities are shown in Table 1.

Table 1: Input data for Origen calculations

Target type	U-Al alloy (93% U-235)
Amount of U-235	4 g per target
Irradiation time	150h
Thermal Neutron flux	$1.5 \cdot 10^{14}$ n/cm ² .s
Cooling time	30h

Actually, 12 targets (48g of U-235) are irradiated and treated in one batch per production and there are 3 productions per week [Verboomen et al. 2009]. The time dependence of the activity for the main five radioxenon isotopes after the end of the irradiation is shown in Fig.2. The total xenon activity that is released from the targets during the dissolution step has been estimated to 438 TBq. If we consider an efficiency of 99% for the Xe-133 recovery and purification lines, a discharge of 4.4 TBq of “fresh” radioxenon (xenon from dissolution) per dissolution can be expected. The main contributions to this activity are coming from the Xe-133 and the short half-live xenon isotopes (Xe-135 and Xe-135m). This graph shows clearly that the xenon isotopic ratio of a discharge happening during the dissolution of the targets can be very different of one coming during the iodine purification step (7 days later). All the radioxenon discharges (puffs and constant releases) that are coming from different places in the facility at different times since the end of the irradiation merge together in the ventilation and reach the atmosphere by the same stack. The complete attribution of each signal detected by a single monitoring system at the level of the stack is virtually impossible because of the overlapping of all kind of radioxenon emissions.

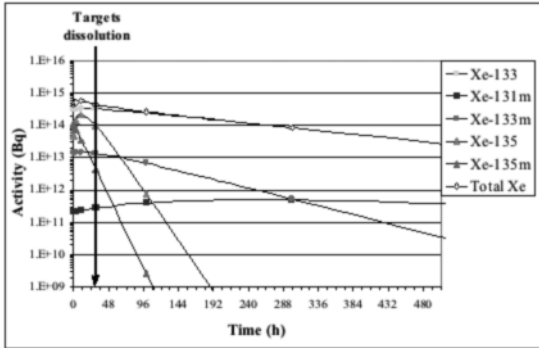


Fig.2. Activity (Bq) versus time (h) for the main xenon radioisotopes produced during the irradiation period.

Another interesting point is to compare the contribution of the xenon activity released during the dissolution to the xenon activity produced by radioactive decay of the other fission products. The evolution of the xenon activity in function of time is shown in Fig.3. in terms of the sum of both types of xenon emissions. The xenon activity that can be released from fission products decaying is about 32 TBq after 100 hours. This contribution accounts for 12.5% of the total activity if all xenon is discharged at that moment. Although this part of radioxenon is generated over several days and probably not released during a short period of time, the amount produced from these decay chains is split during the acidification step between the first Mo-99 purification column (10%) and the purification of iodine (90%) (See Fig.1.). At the end about 10% of the xenon activity produced by radioactive decay of the fission products (3.2 TBq over 4 days) is sent to the liquid wastes storage facility. It illustrates clearly that an untreated xenon discharge can rapidly account for several percents of the total radioxenon emissions and thus can mask the effort put in treating other release pathways.

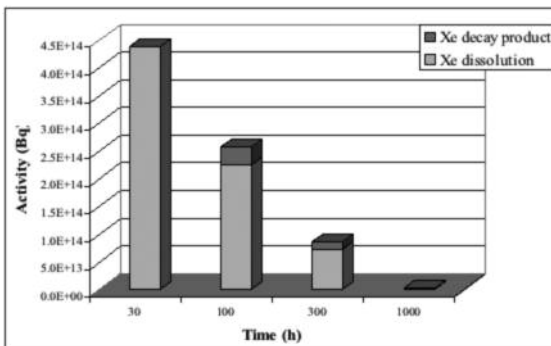


Fig.3. Evolution of xenon activity (Bq) in function of time (h) (grey: Xenon released during dissolution; dark grey: Xenon produced by radioactive decay).

Example of a xenon adsorption delay system

The scheme of the example presented below is shown in Fig.4. This system has been designed for the treatment of gaseous effluents with a relative small flow rate (up to 4l/min) and helium is used as the carrier gas to minimize its influence. Two preconditioning steps have been planned to remove most of the impurities before contact with the adsorbent bed. The first one is relative to the removing of nitrogen oxide by catalytic reduction with ammonia. The second is a pressure swing adsorption (PSA) system for the elimination of water vapour and the carbon dioxide. Four activated carbon packed bed columns (length=100cm, radius=10cm) installed in parallel are the adsorption part for the retention of the xenon.

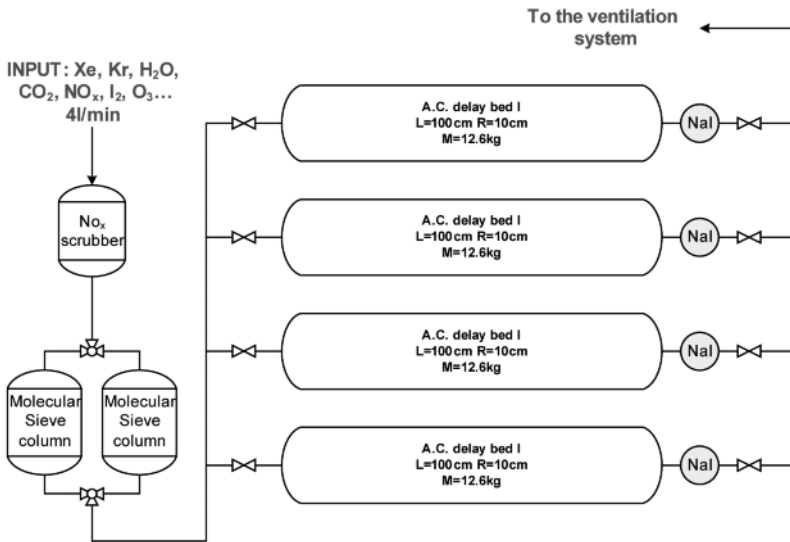


Fig.4. Example of a xenon delay system for the treatment of contaminated gaseous effluents up to 4l/min

A parallel multi-column adsorption system has two advantages:

- To reduce the linear velocity of the carrier gas in each column, which is an important parameter that can seriously affect the retention time;
- Increase the basic safety of the installation with the principle of redundancy.

The monitoring of the radioxenon activity is done by a sodium iodine detector on top of each column and each column can be isolated for decay

if needed. The input and output parameters of the xenon breakthrough curve simulation, based on the experimental data of [Munakata et al. 2001], are listed in table 2.

Table 2: Input and output parameters for the breakthrough curve simulation of the example.

Parameters	Value
Flow rate	4 liters/min.
Temperature	195K
Column length	100cm
Column radius	10cm
Linear velocity	0.53 mm/s in each column
Bed density	0.40g/cm ³
Amount of A.C.	12.6kg/column → 50.4kg
Xenon partial pressure	100 Pa
Effective adsorption coef.	~6500 cm ³ /g
Retention time	56.7 days
Decontamination factor (Xe-133)	> 1000

This example has shown that a small system with only 50kg of A.C. is able to treat a helium flow contaminated with radioxenon up to 4liters/min. We can imagine that each critical step, pointed out from Fig.1, can be treated with this system or that all the contaminated gaseous phases will be sent into a single tank connected to the delay system for a global treatment to reduce the operational costs.

From the radioprotection point of view, this kind of retention system can raise some problems for the protection of workers because of the high specific activities of short-life radioxenon isotopes and the important amount of radioxenon which is going to accumulate inside the adsorption beds.

Conclusions

The possible reduction of the atmospheric radioxenon discharges from a radioisotope production facility like the Institute for Radioelements at Fleurus, Belgium has been investigated. The review of the noble gases filtration/mitigation processes has pointed out that the adsorption on activated carbon is the most suitable technique for this purpose. The analysis of separation and purification steps of the radioisotopes, combined with quantitative estimation by using the ORIGEN code have shown that the dynamics of the xenon emissions are very complex and can not be attributed to only one process but to the entire process flow taking place in the facility.

A small adsorption system working at low temperature has been designed with four parallel activated carbon columns for the retention of radioxenon. Breakthrough curve models have shown that a decontamination factor of more than 1000 for Xe-133 can be expected. However the installation of such a system for the treatment of all possible sources of radioxenon from inside the facility could raise some problems of radioprotection due to the high radioxenon activity present.

Acknowledgments

The authors would like to thank Dr. H. Miley and Dr. J.C. Hayes from the Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) for their advices all through this research. We are grateful to Dr. B. Verboomen, Dr. B. Deconninck, Mr. N. Paquet and Dr. J.-Y. Binamé from the Institute for Radioelements (IRE) for their help and their permanent support.

References

- Bowman S.M., Leal L.C., Hermann O.W., Parks C.V. Origen-ARP, A Fast and Easy-to-Use Source Term Generation Tool, Proceeding of the Ninth International Conference on Radiation Shielding (ICRS-9). 1999 Oct 17-22; Tsukuba, Japan.
- Collard G., Goossens W.R.A., Vaesen J., Glibert R., Baetsé L.H. Cryogenic Distillation Unit for Krypton and Xenon Removal from Gaseous Effluents. Transactions of the American Nuclear Society 1982; 40:122-124.
- Geens L.P., Collard G., Goossens W.R.A., Baetsé L.H. Krypton recovery from Reprocessing Off-gases by Cryogenic Distillation. Radioactive Waste management and Environmental Restoration 1985; 6(3-4):219-235.
- Kidd L., Curies for patients. Nuclear Engineering International 2008; 53(648): 26-32.
- Lee K.B., Madey R., The transmission of Xenon-133 through Activated Carbon Adsorber Beds. Nuclear Science and Engineering 1971; 43:27-31.
- Madey R., Huang J.-C., Pflumm E., Transmission of a Gaseous Radioactive Isotope Through an Adsorber Bed. Nuclear Science and Engineering 1981; 78:205-210.
- Moeller D.W., Underhill D.W., Review and Evaluation of Factors Affecting Noble-Gas Adsorption on Activated Carbon. Nuclear Safety 1981; 22(5):599-611.
- Mondino A.V., Manzini A.C., Cerutti G.L., Iglicki F.A., Novello N.A., Retention of fission xenon in air by activated carbon at 2 °C. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 2002; 253(2):205-208.
- Munakata K., Fukumatsu T., Yamatsuki S., Tanaka K., Nishikawa M. Adsorption Equilibria of Krypton, Xenon, Nitrogen and Their Mixtures on Molecular Sieve 5A and Activated Charcoal. Journal of Nuclear Science and Technology 1999; 36(9):818-829.
- Munakata K., Tanakata K., Yamatsuki S., Fukumatsu T., Kanjo S., Yokoyama Y., Nishikawa M., Dynamics of Adsorption of Kr and Xe on MSA and Activated Charcoal. Journal of Chemical Engineering of Japan 2001; 37(7):853-861.
- Saey P.R.J., Ultra-Low-Level Measurements of Argon, Krypton and Radioxenon for Treaty Verification Purposes. Esarda Bulletin 2007; 36:42-56.
- Saey P.R.J., The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radioxenon background. Journal of Environmental Radioactivity 2009; 100:396-406.
- Salacz J., Reprocessing of irradiated Uranium-235 for the production of Mo-99, I-131, Xe-133 radioisotopes. Revue IRE 1985; 9(3):22-28.
- Stern S.A., Wang S.-C., Permeation Cascades for the Separation of Krypton and Xenon from Nuclear Reactor Atmospheres. AIChE Journal 1980; 26(6):891-901.
- Verboom B., Deconninck B., Paquet N., Binamé J.-Y., Pers. Communication. Institute for Radioelements (IRE), Belgium 2009.
- Winger K., Freichter J., Kalinowski M.B., Sartorius H., Schlosser C., A new compilation of the atmospheric ⁸⁵krypton inventories from 1945 to 2000 and its evaluation in a global transport model. Journal of Environmental Radioactivity 2005; 80:183-215.

ROND VIJFTIG JAAR NVS

Hielke Freerk Boersma

Voorzitter Nederlandse Vereniging voor Stralingshygiëne (NVS)

Inleiding

In deze bijdrage ter gelegenheid van het vijftig jarig bestaan van de Nederlandse Vereniging voor Stralingshygiëne (NVS) zal ik niet proberen 50 jaar geschiedenis van onze vereniging samen te vatten. Hoe het de NVS in de afgelopen vijftig jaar is vergaan kunt u lezen in het eerste nummer van het nieuwe tijdschrift van de NVS, het Nederlands Tijdschrift voor Stralingsbescherming (NTvS), waarin ook dit artikel in een licht gewijzigde versie is opgenomen¹. Daarnaast kunt u voor de eerste 35 jaar van de NVS altijd nog terugvallen op de lustrumpublicatie van de NVS uit 1995 door dr. Nettie Beekman en wijlen dr. Joh Aten².

In dit artikel wil ik om te beginnen een beeld te schetsen van de stralingsbescherming aan de vooravond van de oprichting van de NVS. In het tweede gedeelte zal ik stilstaan bij de vraag waar vijftig jaar NVS ons gebracht heeft. Dit artikel heeft niet de pretentie volledig dan wel wetenschappelijk verantwoord te zijn en geeft alleen mijn eigen mening weer.

Voor de ‘voorgeschiedenis’ van de NVS heb ik me beperkt tot een populair wetenschappelijk werkje getiteld ‘Straling en stralingsgevaar’³. Deze publicatie geeft een zeer compleet beeld van de wetenschappelijke ontwikkelingen op het gebied van de stralingsbescherming anno 1958-

¹ H.F. Boersma – Rond vijftig jaar NVS, NTvS 1(1):9 (2010)

² Z.M. Beekman & J.B.Th. Aten – Stralingshygiëne: een terugblik, NVS-publicatie nr.27 (1995)

³ Straling en stralingsgevaar – Jack Schubert & Ralph E. Lapp, voor de Nederlandse markt bewerkt door P.J.L. Scholte, J. Weber en F.H. Sobels, Em. Querido's Uitgeversmaatschappij N.V., 1960.

1960, dus in de jaren direkt voorafgaand aan de oprichting van de vereniging.



De stand van de stralingsbescherming eind jaren vijftig

Eind jaren vijftig waren zo'n 60 jaar verstreken sinds de ontdekking van röntgenstraling en radioactiviteit. Er was veel bekend over de schadelijke effecten van ioniserende straling, in het bijzonder die ten gevolge van bestraling met röntgentoestellen enerzijds, en die van toediening van radium en andere min of meer natuurlijke isotopen anderzijds. Het is frappant te lezen dat al in 1896 door een ontwerper van röntgenbuizen, Elihu Thomson, proefondervindelijk een aantal stralingshygiënische eigenschappen en principes werden geformuleerd. De meeste daarvan zijn tot op de dag van vandaag geldig, althans waar het de deterministische effecten betreft⁴:

1. röntgenstralen zijn aansprakelijk voor schade aan het weefsel;
2. de ernst van de beschadiging is evenredig met de toegediende dosis;
3. er is blijkbaar een punt waarboven de straling niet mag gaan zonder risico op ernstig letsel;
4. de intensiteit van de stralen neemt af met het kwadraat van de afstand tot het uitgangspunt;
5. de biologische werking is niet onmiddellijk zichtbaar.

Thomson koppelde hieraan nauwkeurige aanwijzingen voor bescherming tegen röntgenstraling. Je zou dus mogen verwachten dat zestig jaar later de stralingshygiëne rond in elk geval röntgentoestellen, in het bijzonder de medische, uitstekend zou zijn. Getuige een door een Californische radioloog geformuleerde waarschuwing richting zijn medewerkers was dat echter nog niet overal het geval: "de zorgeloosheid waarmee tegenwoordig

⁴ Vermoedelijk E. Thomson – Roentgen ray burns, Am X-ray J 1898; 3:451-3.



IEC Archives

Elihu Thomson

van straling gebruik wordt gemaakt, mag te vergeven zijn geweest toen de radiologie nog weinig verbreid was, maar nu straling links en rechts wordt toegepast, is het noodzakelijk dat wij ons leven beteren”. De voorzitter van de American Medical Association was vrijwel gelijktijdig echter de mening toegedaan dat ‘Röntgenstralen tegenwoordig weinig gevaar opleveren, zowel voor medicus als patiënt’. De lange lijst met beschreven incidenten in bovengenoemde publicatie doet vermoeden dat de radioloog uit Californië het dichtst bij de waarheid zat. Uiteraard deed het merendeel van de incidenten zich in de eerste decennia na de ontdekking van röntgenstraling voor, terwijl incidenten in de jaren veertig en vijftig veelal het gevolg waren van slecht functionerende apparatuur.

De behoefte aan meer aandacht voor de stralingsbescherming werd niet alleen ingegeven door het hierboven gesuggereerde gebrek aan stralingsbescherming, maar ook door een aantal ontwikkelingen die zich in de periode tijdens en kort na de Tweede Wereldoorlog voordeden:

1. de kernwapenwedloop met de daaraan gekoppelde bovengrondse kernproeven en de daarvan resulterende fall-out;
2. de bouw van kerncentrales;
3. de recente medische ontwikkelingen, in het bijzonder op het gebied van de nucleaire geneeskunde.

Het was overigens zeker niet zo dat er weinig bekend of geregeld was. De limiet voor externe bestraling was sinds 1950 0,3 R per week voor mensen die beroepshalve met straling in aanraking kwamen. De ICRP had eind '58, in navolging van de Amerikaanse NCRP en van EURATOM, een verlaging van deze limiet naar 0,1 R per week aanbevolen. Voor het eerst had de ICRP

ook een limiet voor leden van de bevolking genoemd: een tiende van de limiet voor radiologisch werkers. De stralingshygiënische schade werd vooral beschreven in termen van somatische en genetische schade, en er waren net aanwijzingen voor het ontbreken van een drempeldosis voor carcinogenese. De ‘Linear-No-Threshold’-hypothese (LNT-hypothese) stond in de kinderschoenen. Ook niet zo vreemd: de dosimetrie was nog een relatief jonge wetenschap en de eerste resultaten van de Life Span Study, waarin de slachtoffers van de atoombommen op Hiroshima en Nagasaki gevolgd werden en worden, waren pas enkele jaren beschikbaar.

Over de gevolgen van uitwendige bestraling bestond verreweg de meeste kennis. Over (de gevolgen van) inwendige besmetting met radioactieve stoffen was veel minder bekend. Hierin werd een grote bedreiging en uitdaging gezien: de nucleaire geneeskunde stond nog in de kinderschoenen maar ontwikkelde zich bijzonder snel. De enige echte ervaring die er was met betrekking tot inwendige besmetting hing samen met toepassingen van natuurlijke radioactieve stoffen als radium en thorium. Denk daarbij bijvoorbeeld aan de vrouwen die wijzerplaten met radiumverf beschilderden. Lichtgevende wijzerplaten waren in de jaren vijftig nog alom tegenwoordig. De auteurs van eerstgenoemde publicatie menen bijvoorbeeld op te moeten merken dat moeders dringend wordt aangeraden lichtgevende voorwerpen (zoals ‘slaapkamerklokjes’) uit de buurt van hun kinderen te houden – niet alleen vanwege de onnodige uitwendige straling, maar ook omdat het gevaar bestaat dat een kind per ongeluk iets van het radioactief materiaal in de mond krijgt. Voor uw auteur heeft deze waarschuwing niet mogen baten: meer dan tien jaar stond een radiumwekker naast zijn bed zonder dat die overigens ooit open gemaakt is.



Het gewraakte ‘slaapkamerklokje’

De ICRP publiceerde in de jaren vijftig de eerste ‘MAC-waarden’ in $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$. De eerste modellen voor de verspreiding van radioactieve stoffen in, en de verwijdering daarvan uit het lichaam waren eveneens beschikbaar (ICRP-publicatie nr.2).



De situatie in Nederland – 1960

Al in 1927 had de Gezondheidsraad voor röntgenstraling een maximaal toelaatbare dosis van 0,04 R/d voorgesteld, hetgeen dus ongeveer gelijk was aan de in de vijftiger jaren geldende aanbevelingen van ondermeer de ICRP. Op basis van deze aanbevelingen werd in 1931 de Röntgenstralenwet in de Tweede Kamer aanvaard. Dertig jaar later was deze wet echter nog steeds niet uitgevoerd. Hij is overigens wel ingetrokken (zie art. 87 van de huidige Kernenergiewet).

In de jaren vijftig was een begin gemaakt met wettelijke regelingen omtrent de bescherming van ‘arbeiders’ tegen de schadelijke gevolgen van ioniserende straling. Dit gebeurde in het ‘Veiligheidsbesluit ioniserende stralen’, dat onder de Veiligheidswet uit 1934 viel. Let wel: het ging hier uitsluitend om de bescherming van mensen die een dienstverband hadden. Veel medici vielen dus niet in deze groep. Overigens zal de wet vooral bedoeld zijn voor de bescherming tegen uitwendige bestraling: in Nederland kon men tot het eind van de vijftiger jaren maar moeilijk aan radioactieve stoffen komen. Alleen het IKO (Instituut voor Kernfysisch Onderzoek) in Amsterdam, voorloper van het NIKHEF, kon deze stoffen in kleine hoeveelheden maken. Voor het overige gold er een verplichting tot invoervergunningen (uit de Verenigde Staten en het Verenigd Koninkrijk), waarbij de KNAW de deskundigheid van de gebruiker moest beoordelen. Toen in de vijftiger jaren de beperkingen vanuit deze beide landen werden opgeheven ontstond in Nederland de noodzaak tot regulering. Dit leidde in

1958 tot het Radioactieve Stoffen Besluit dat ondergebracht werd bij de Warenwet. Dit besluit kende een systeem van toelating tot het verwerken en gebruiken van radioactieve stoffen.

De door Scholte en Weber getrokken conclusie is dat, gezien de verwachte 'noodzakelijke kernenergiewinning' en de noodzakelijke maatregelen op het gebied van de stralingsbescherming, de wetgeving anno 1960 niet bevredigend en onvoldoende was, te incidenteel en onoverzichtelijk.

Tegelijkertijd trokken zij de conclusie dat het besef van de gevaren van ioniserende straling groeide. Als voorbeeld werden daarbij de start van een filmbadgedienst en de ontwikkeling van het radiobiologisch onderzoek, beide bij TNO, genoemd. De bewustwording van de gevaren van ioniserende straling ging eveneens gepaard met de oprichting van verenigingen waar men de problemen rond radioactiviteit op wetenschappelijke wijze bestudeerde. Zo werd op 2 februari 1959 de Nederlandse Vereniging voor Radiobiologie opgericht. Ruim een jaar later was het dan de beurt aan de NVS. Op 4 februari 1960 vond in Den Haag de oprichtingsvergadering plaats in het Gemeenteziekenhuis aan de Zuidwal. Deze vergadering werd georganiseerd door oud-cursisten van de eerste door het Interuniversitair Centrum voor Radiopathologie en Stralenbescherming (IRS) te Leiden gehouden cursus 'straling en stralingseffecten voor artsen'.



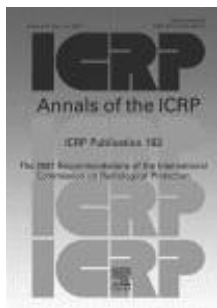
Het Gemeenteziekenhuis aan de Zuidwal, Den Haag, aan het begin van de 20^{ste} eeuw

Het is aardig te memoreren dat de NVS en de Kernenergiewet op bijna hetzelfde moment het licht zagen: op 2 februari 1960 werd het ontwerpbesluit Kernenergiewet ingediend bij de Tweede Kamer, waarmee in feite het concept van een wet beschikbaar was waarmee integraal de meeste aspecten van ioniserende straling zouden worden gereguleerd (werknemers- en milieuaspecten, röntgentoestellen, radioactieve stoffen en splijtstoffen). Tevens sloot het wetsontwerp aan bij de Europese basisnormen. Daarnaast waren voor medische toepassingen in 1959 aanbevelingen gepubliceerd in het Nederlands Tijdschrift voor Geneeskunde. De Kernenergiewet werd overigens pas in 1970 van kracht, maar is, net als de NVS, nog steeds springlevend.

Vijftig jaar stralingsbescherming in vogelvlucht

Voor ik in ga op de vraag waar we als NVS nu staan, allereerst een paar algemene opmerkingen over de ontwikkelingen op het gebied van de stralingsbescherming in de afgelopen vijftig jaar.

Het onderscheid tussen somatische en genetische effecten is min of meer vervangen door een onderscheid tussen deterministische en stochastische effecten. De kennis over deze effecten in het algemeen en de stochastische in het bijzonder, is enorm toegenomen. De Life Span Study heeft een belangrijke bijdrage geleverd aan ons inzicht in de gevolgen van relatief lage doses en vormt één van de pijlers onder de LNT-hypothese. De voor blootgestelde werknemers geldende dosislimiet is mede hierdoor van 50 mSv/jaar in de jaren zestig verlaagd naar 20 mSv/jaar in 1991 (ICRP-60). De meest recente aanbevelingen van de ICRP (ICRP-103) hebben geen aanleiding gegeven deze dosislimiet te wijzigen. Tegelijkertijd bestaan er bij lage doses (ordegrootte 10 mSv en lager) grote onzekerheden in de geldigheid van de LNT-hypothese. Er spelen zich allerlei processen op moleculair, cellulair en weefselniveau af die niet-lineair zijn; epidemiologisch onderzoek van individuen die aan een effectieve dosis van 1-10 mSv blootgesteld zijn zal altijd onvoldoende nauwkeurig zijn om de geldigheid van de LNT-hypothese in dit dosisgebied te bewijzen. De ICRP meldt in publicatie nr. 103 echter dat het hanteren van de LNT-hypothese in combinatie met een afgewogen waarde voor de Dose en Dose-Rate Effectiveness Factor (DDREF) een prudente basis vormt voor de praktische



stralingsbescherming⁵. Een mooi overzicht van de huidige stand van zaken in het lage-dosis gebied wordt overigens geboden in een recent nummer van Health Physics⁶ (dat ieder NVS-lid kan en eigenlijk zou moeten ontvangen: een wetenschappelijk tijdschrift voor nog geen 70 Euro per jaar).

In de stralingshygiënische praktijk zijn we inmiddels al meer dan dertig jaar bekend met de uitgangsprincipes van de stralingsbescherming die grotendeels op de LNT-hypothese gebaseerd zijn: rechtvaardiging, optimalisatie en dosislimieten. Van recenter datum zijn de dosisbeperkingen die in feite per bron een plafond aan de optimalisatie stellen.

Ontwikkelingen in Nederland in de periode 1960-2010

Wie had gedacht dat Nederland in de zestiger en zeventiger jaren volgebouwd zou worden met kerncentrales kwam bedrogen uit. Bijna gelijktijdig met de oprichting van de NVS werd het aardgasveld in Slochteren (provincie Groningen) aangeboord en amper tien jaar later kookte bijna heel Nederland op aardgas. Een tweede poging om kernenergie te promoten, begin jaren tachtig als uitvloeisel van de energiecrises, liep schade op door de uitkomsten van de eerste 'Brede Maatschappelijke Discussie'. De Nederlandse Tweede Kamer besloot in juni 1985 overigens gewoon tot de bouw van twee nieuwe kerncentrales. Toen in 1986 een experimentje in een Sovjet-kerncentrale tot een (vooral vanuit publicitair

⁵ The 2007 Recommendations of the ICRP, ICRP publication 103, Ann. ICRP vol. 37 (2-4), 2007

⁶ Health Physics, vol.97, no.5, november 2009 – 44th Annual Meeting of the National Council on Radiation Protection and Measurements: Low Dose and Low Dose-Rate Radiation Effects and Models

oogpunt) ongekeerde ramp leidde was het echter echt afgelopen. Pas de laatste jaren durven sommigen het woord kernenergie weer schoorvoetend in de mond te nemen en wordt weer gedacht aan de bouw van nieuwe kerncentrales.

Tegelijkertijd hebben de medische toepassingen op radiologisch, radiotherapeutisch en nucleair geneeskundig gebied een enorme vlucht genomen. Ook op dit moment zijn er belangrijke ontwikkelingen gaande, waarvan misschien de toepassing van protontherapie en de ontwikkeling van de PALLAS reactor voor de productie van medische isotopen (maar ook voor nucleair onderzoek) de meest in het oog springende, maar zeker niet de enige zijn. Zo bekeken is de huidige situatie enigszins vergelijkbaar met die van vijftig jaar geleden: uitdagingen in zowel de nucleaire als medische sector.

Totaal anders is dat als we kijken naar de opleiding van stralingsdeskundigen en het vergunningstelsel. Oud-cursisten van de eerste opleiding ‘straling en stralingseffecten voor artsen’ stonden aan de wieg van de NVS. Voor het overige waren er eigenlijk nog geen cursussen. De opleiding van artsen is nog heel lang een probleem gebleven en is dat soms nog wel (althans zo zal dat vrij algemeen door stralingsdeskundigen worden gezien, de betrokken artsen zullen er ongetwijfeld anders over hebben gedacht). Het nu nog steeds gebruikte stelsel voor erkende opleidingen tot stralingsdeskundige stond echter al begin jaren zeventig in de steigers: de eerste niveau 2 opleiding dateert van 1971 en sinds 1973 worden landelijk gecoördineerde niveau 3 examens gegeven (toen nog B- en C-cursus genaamd). Pas de laatste jaren wordt er gesleuteld aan het systeem, mede naar aanleiding van een advies van de Gezondheidsraad uit 2008⁷.

In 1960 bestond eigenlijk alleen nog maar via het Radioactieve Stoffen Besluit enige vorm van ‘voorlopige’ vergunningverlening. Anno 2010 zijn we al jaren bekend met een vergunningstelsel waarvan de belangrijkste pijlers de vergunningen voor het voorhanden hebben en gebruiken van radioactieve stoffen en/of ioniserende straling uitzendende toestellen

⁷ Opleiden van deskundigen op het gebied van stralingsbescherming – Gezondheidsraad rapport nr. 2008/06, 2008 - <http://www.gezondheidsraad.nl/sites/default/files/200806.pdf>.

betreffen. Deze vergunningen kunnen worden onderverdeeld in drie categorieën: enkelvoudige, verzamel- en complexvergunningen.

Waar staat de NVS anno 2010?

Het is met name, maar niet uitsluitend, in de categorieën verzamel- en complexvergunning dat het gemiddelde NVS-lid vandaag de dag opereert. Rond 1960 bestond vooral bij de gebruikers behoefte aan kennis omtrent de gevaren van ioniserende straling, anno 2010 is 'stralingsdeskundige' een 'erkend' beroep (erkend in de zin van een door de International Labour Organization erkend specifiek beroep). Soms is de stralingsdeskundige zelf nog gebruiker, maar vaak is hij/zij iemand die dat vanuit een ondersteunende dienst doet, dan wel iemand die een ondergeschikte positie op de werkvloer inneemt. Feit is dat, zeker bij de meeste verzamel- en complexvergunninghouders, de stralingsveiligheid tegenwoordig in het algemeen goed geregeld is. En dat is mede te danken aan het gemiddelde NVS-lid dat anno 2010 dat op operationeel niveau zijn mannetje staat.

De doelstelling van de vereniging om de praktische toepassing van wetenschappelijke inzichten in de stralingsbescherming te bevorderen heeft de vereniging de afgelopen halve eeuw naar mijn bescheiden mening dan ook zeker gehaald. De NVS is op dit aandachtsgebied, zeker voor de



Deelnemers aan de NVS-workshop op 4 februari 2010.

Foto: Leo 't Hooft, Min. VROM

overheid, een belangrijke gesprekspartner. Een mooie illustratie hiervan is het feit dat de vereniging op 4 februari jl. (inderdaad: op de vijftigste verjaardag van de NVS!) een workshop in Den Haag organiseerde over het Concept Besluit Stralingsbescherming 2011. Hierbij trad het ministerie van VROM als gastheer op.

Tegelijkertijd lijkt de verwezenlijking van het eerste doel van de vereniging, de bevordering van de wetenschappelijke kennis op het gebied van de stralingsbescherming, onder druk te staan. Zo signaleert de Gezondheidsraad in het eerder genoemde advies een achteruitgang in de wetenschappelijke expertise op het gebied van de stralingsbescherming. Hoewel dit signaal nauwelijks wordt onderbouwd kan een aantal mogelijke redenen worden genoemd die aan deze achteruitgang bijdragen. In willekeurige volgorde:

1. stralingsdeskundigen in ondergeschikte dan wel ondersteunende posities zijn zelf veelal geen wetenschappers;
2. de nucleaire sector, waarin zich in de afgelopen decennia internationaal veel ontwikkelingen hebben voorgedaan, is in Nederland, na het aanvankelijke enthousiasme in de zestiger jaren, altijd marginaal gebleven;
3. het kernfysisch onderzoek in Nederland, waarin vaak veel gebruikers ook stralingsdeskundige waren, is nagenoeg verdwenen; men bedenke daarbij dat dit samengaat met het feit dat veel stralingshygiënische kennis op dit terrein gestandaardiseerd is;
4. de NVS is vooral bekend bij degenen die als stralingsdeskundigen werken, maar minder bij hen die stralingshygiënisch relevant onderzoek verrichten.

Wellicht suggereert de Gezondheidsraad met bovengenoemde opmerking dat er in Nederland weinig (wetenschappelijk) onderzoek op het gebied van de stralingsveiligheid gebeurt. Dit zou men kunnen illustreren aan de hand van bijvoorbeeld het geringe aantal van vijf Nederlandse bijdragen aan het derde regionale congres van de International Radiation Protection Association (IRPA) in Helsinki, juni 2010. Ik betwijfel of dat beeld helemaal juist is. Geconstateerd kan wel worden dat er (althans bij mij) weinig zicht is op hetgeen in Nederland gebeurt aan onderzoek met relevantie voor de stralingsbescherming. Het kan immers ook nog zo zijn dat een significant deel van de onderzoekers die voor de stralingsbe-

scherming relevant onderzoek uitvoeren niet bekend zijn met het bestaan van de NVS of de IRPA. Ik zie hierin dan ook een belangrijke uitdaging voor onze vereniging in de komende jaren. Het afgelopen jaar hebben we een begin gemaakt met het aanhalen van contacten met o.a. de NVKF, NVRb, NCS en NVMBR⁸ met als intentie meer bekendheid aan het werk van de NVS te geven en waar mogelijk gezamenlijk op te trekken. Daarnaast steunt de NVS volop het initiatief van de Nederlandse overheid tot het inventariseren van het wetenschappelijk onderzoek op het gebied van de stralingsbescherming in Nederland. Ik ben van mening dat daaraan ook het wetenschappelijk onderwijs moet worden toegevoegd. De NVS kan onder meer via haar website de resultaten van die inventarisatie breder bekend maken. Tevens zou zij een podium kunnen vormen voor de betrokken wetenschappers en zodoende kunnen bijdragen aan het behouden van het overzicht van dit wetenschappelijk onderzoek in Nederland.

Tot slot

Samengevat denk ik dat de NVS de komende jaren als een belangrijke en gewaardeerde speler op operationeel gebied zal blijven acteren. Daarnaast hoop en verwacht ik dat de NVS duidelijker dan in het recente verleden een rol kan spelen als ontmoetingsplaats voor hen die wetenschappelijk onderzoek op ons vakgebied uitvoeren. Ik wil daarbij de wens uitspreken dat onze vereniging ook in de toekomst nauwe contacten blijft onderhouden met onze Belgische zustervereniging. Omdat de doelstellingen van BVS en NVS uiteraard voor een belangrijk deel overeenkomen is de verwezenlijking van onze gezamenlijk doelstellingen zeer gebaat bij deze contacten!

12 april 2010

⁸ NVKF: Nederlandse Vereniging voor Klinische Fysica; NVRb: Nederlandse Vereniging voor Radiobiologie; NCS: Nederlandse Commissie voor Stralingsdosimetrie; NVMBR: Nederlandse Vereniging Medische Beeldvorming en Radiotherapie.