

ISSN - 0250 - 5010

**ANNALEN
VAN
DE BELGISCHE VERENIGING
VOOR
STRALINGSBESCHERMING**

VOL. 19, N° 4

4e trim. 1994

**Derniers développements
des détecteurs de radiations**

**Laatste ontwikkelingen
van stralingsdetectoren**

Driemaandelijkse periodiek
2400 MOL I

Périodique trimestriel
2400 MOL I

**ANNALES
DE
L'ASSOCIATION BELGE
DE
RADIOPROTECTION**

SOMMAIRE

Ce numéro contient des textes d'exposés présentés le 17 juin 1994 lors d'une réunion organisée à Gent par l'Association belge de Radioprotection consacrée à

Derniers développements des détecteurs de radiations

- G. MEESEN, A. POFFIJN

Use of retrospective radon measurements for risk assessment

- J. SEUNTJENS

Absolute determination of absorbed dose to water based on water calorimetry

- Ph. VANHAVERE

Neutron detection based on superheated drops

- T. STREIL, R. KLINKE, G. JUST, A. POFFIJN, G. MEESEN

Microsystems for dosimetry and radiation protection in first applications for radon- and progeny monitoring

- D. BLANC

Quelques recherches en dosimétrie de radioprotection (texte non disponible)

- D. REGULLA

Recent developments of personal monitoring in Germany (text not available)

- P.H. BURGESS

Progress in electronic personal dosimetry in the U.K. (text not available)

textes remis à l'éditeur:

- J.-C. ZERBIB

Accidents radiologiques: les retours d'expériences

- J.-C. ZERBIB

Accidents sur irradiateurs: le retour d'expériences

INHOUD

Dit nummer bevat teksten van de uiteenzettingen gedaan in Brussel op 17 juni 1994 ter gelegenheid van van een vergadering van de Belgische Vereniging voor Stralingsbescherming te Gent, gewijd aan:

Laatste ontwikkelingen van stralingsdetectoren

USE OF RETROSPECTIVE RADON MEASUREMENTS FOR RISK ASSESSMENT

Meesen G. *, Poffijn A. *

* Nuclear Physics Laboratory, University Gent, Proeftuinstraat 86, B-9000 Gent
,Belgium

Abstract

It is a well known fact that radon is the most important factor in the natural radiation background. For complete risk estimation we need information about the past radon exposure. As suggested by C. Samuelsson *et al.* in 1988, the activity of the implanted radon daughter ^{210}Po can be used to reconstruct the radon activity over the past decades. This paper presents different techniques to measure the past radon exposure. Most of these techniques use solid state nuclear track detectors. By automated image analysis systems, information can be obtained about different parameters of the indoor environment.

1. Introduction

In Belgium, the mean annual radiation dose for the population is about 4 mSv; approximately half of this is due to natural radon. The inhaled radon daughters can deposit on the lung tissue and cause damage by alpha emission. For complete radiation burden calculations, as required in epidemiological studies, we need information about the radon concentration from several decades ago. This concentration however is not constant because small changes in the construction of a dwelling can cause drastic changes in the average radon concentration.

In 1988, C. Samuelsson *et al.*[1] proposed a technique to assess the cumulated radon activity over several decades in a retrospective way. The method is based on the plate-out of short lived radon daughters on hard materials such as stone, glass, ceramics and enamel (fig 1). The rate of this plate-out is determined by the indoor air conditions of the room, i.e. aerosol composition, ventilation, ... The plated-out daughters can get implanted in the surface by their recoil energy. These daughters decay further to ^{210}Pb and ^{210}Po ; the activity of this last daughter can be measured by alpha counting. Because of the long half life of ^{210}Pb (22.3 y), the hard materials

act as a memory for the indoor radon concentration over several decades. Together with information about the indoor air conditions, the past radon exposure can be calculated.

2. Measuring Techniques

There are two main techniques to measure the implanted ^{210}Po activity: active measurements and passive measurements. The active measurements are based on an open flow pulse ionisation chamber. This spectroscopic type of ionisation chamber is mounted directly on the

surface of the hard material, which serves as the cathode. The chamber is flushed with an ionisation gas. Because the concentration of the implanted ^{210}Po can be very low ($0\text{--}50\text{ Bq/m}^2$), the active surface of the chamber has to be large ($\varnothing 20\text{--}30\text{ cm}$). With this type of measurements, a spectrum from the implanted alpha activity in the material can be obtained within one day (fig 2). This spectrum allows us to discriminate between background alphas and alphas from ^{210}Po . The main disadvantage is that the equipment is rather complicated to use in the field, because it is not only sensitive to interference but also very heavy.

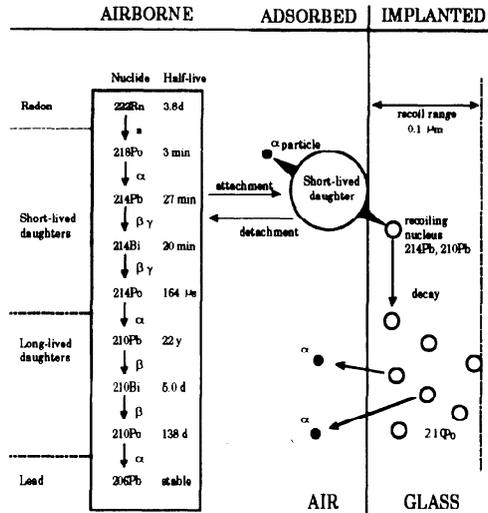


Fig.1 : Schematic illustration of the radon (daughter) decay and implantation in glass.

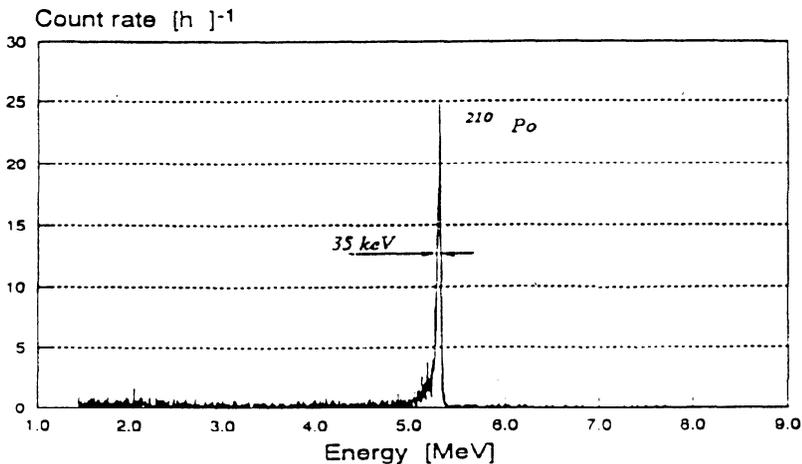


Fig.2 : Alpha spectrum from a glass sheet measured by a pulse ionisation chamber

The passive measurements are based on nuclear track detectors. Different types of detectors can be used : polycarbonate, cellulose nitrate, CR-39... The basic set-up consists of a track detector mounted on the hard material. Depending on the type of detector used, an energy degrader is placed in between to bring the 5.31 MeV alpha radiation from ^{210}Po within the energy window for which the detector is sensitive. Different techniques can be used to discriminate between background alphas and ^{210}Po alphas. We can distinguish two different methods : the method of using different types of detector material or energy degraders to measure the alphas in different energy regions and the method of using different parameters of the tracks formed in the track detectors to do alpha spectroscopy. An example of the first method is the detector developed by Falk *et al.* [2]. The set-up consists of two different track detectors exposed simultaneously : one CR-39 and one cellulose nitrate (Kodak LR-115) detector. With its energy window of 0-15 MeV, the CR-39 measures all the alpha activity. The LR-115 (1.2-4.8 MeV) however measures only background alphas. Extrapolation of this number to the total energy range, allows us to separate the ^{210}Po peak from the background. The second method makes a discrimination between background tracks and ^{210}Po tracks by means of spectroscopy on track detectors, mostly CR-39. For this, an automated image analysis system measures the different parameters of single tracks. These track parameters include optical density, major and minor axis, area, shape and so on. Combining these different track parameters results in a spectrum. Fews *et al.* [3] reports on resolutions of 0.1 MeV for protons. A variation on this technique is used by Hadler *et al.* [4] They classify tracks on the basis of their optical density and area to discriminate tracks formed by plated-out radon daughters and those formed by ^{222}Rn and ^{222}Rn -daughters in air.

3. Field Results

First results from a small field test using a pulse ionisation chamber were reported by Samuelsson [1]. He found a good correlation between the measured implanted ^{210}Po activity in glass and the accumulated radon concentration. More recent studies done by different people using both active and passive systems confirm this result. The reported values for the slope of the regression of ^{210}Po alpha activity in surfaces versus their estimated effective exposure to ^{222}Rn are consistent with the result from Samuelsson [5] namely $0.8 \text{ (Bq/m}^2\text{)}/(\text{kBq.y/m}^3\text{)}$.

In the framework of a CEC funded research project on radon, a new type of retrospective detector has been constructed by McLaughlin *et al.* [6] It uses three CR-39 surfaces to measure simultaneously the implanted ^{210}Po , the ^{222}Rn in air and the plated-out ^{214}Po activity. The technique described by Hadler *et al.* [6] is used to analyse the detectors. The information provided by these three detectors gives the possibility to better characterise the indoor air situation and therefore better calculate the past radon exposure.

Results on a feasibility study for the application of the retrospective technique in the field of epidemiology have been reported by Mahaffey *et al.*[7] The goal of this study was to test the practicality of identifying suitable objects for measuring the implanted ^{210}Po activity and to test the possibility of using the retrospective technique for reproduction of the past radon exposure. The results of this study show that in most cases glass object such as panels in cupboards, picture frames and mirrors are best suited for measurements because they are in almost every dwelling available. The results also showed a good agreement between measurements made on different objects in the same dwelling.

4. Conclusion

In radon risk assessment, information from several decades ago is needed. Long term ^{222}Rn measurements with passive detectors mostly are limited to one year. The ^{222}Rn concentration however can change drastically by changes to the construction of the dwelling, such as closing a small ventilation shaft. If this change appeared before the ^{222}Rn measurement but during the stay of the inhabitants, the total ^{222}Rn exposure is misjudged. Other problems occur if the inhabitants have moved from another house which can't be measured anymore. In both these situations, retrospective ^{222}Rn measurements can be a valuable tool. It eliminates the problem of sudden changes in the past. Furthermore, information from previous dwellings can be obtained if an object that was exposed in this dwelling is available. This object can be a mirror, a picture frame, or some other material suited for measuring implanted ^{210}Po activity. The retrospective technique therefore can give valuable extra information concerning the risk of radon exposure.

5. References

- [1] C.Samuelsson, Nature, vol. 334, 28 July (1988), pp. 338-340

- [2] R.Falk *et al.*, "Progress report on CEC contract no. F13P-CT920025, 1993-1994

- [3] A.P.Fews, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B17 (1992), pp. 465-478

- [4] J.C.Hadler N, S.R.Paulo, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 51, No. 4 (1994), pp. 283-296

- [5] C. Samuelsson, L. Johanssen, M. Wolf, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 45, No. 1/4 (1992) pp. 73-75

- [6] J. McLaughlin *et al.*, "Progress report on CEC contract no. F13P-CT920025, 1993-1994"

- [7] J.A.Mahaffey, M.A.Parkhurst, A.C.James, F.T.Cross, *et al.*, Health Physics, Vol. 64, No. 4 (April 1993), pp. 381-391

Résumé

Il est bien connu que le radon est le facteur le plus important du bruit de fond des radiations naturelles.

Pour une estimation complète du risque nous devons avoir des informations sur l'exposition au radon dans le temps. Comme le suggèrent C. Samuelsson et al. en 1988, l'activité du ^{210}Po , produit de filiation du radon implanté, peut être utilisée pour reconstituer l'activité du radon au cours des dernières décennies. Cet exposé présente les différentes techniques utilisées pour mesurer l'exposition au radon dans le passé. La plupart de ces techniques utilisent des détecteurs nucléaires à traces. Par des systèmes automatiques d'analyse d'image, l'information peut être obtenue en ce qui concerne différents paramètres de l'environnement intérieur.

Samenvatting

Het is een bekend feit dat radon de meest belangrijke bijdrage levert tot de natuurlijke achtergrondstraling. Voor complete risico schattingen heeft men informatie nodig over de radon blootstelling in het verleden. In 1988 werd door C. Samuelsson et al. een techniek voorgesteld om de geïmplanteerde activiteit van de radon dochter ^{210}Po te gebruiken voor reconstructie van de radon activiteit gedurende de laatste decennia. Dit artikel bespreekt de verschillende gebruikte methoden. De meeste van deze methoden maken gebruik van kernspoor detectors. Door deze detectors te analyseren met automatische beeldverwerkingssystemen is men in staat om verschillende parameters van het leefmilieu in woningen te bepalen.

Absolute Determination of Absorbed Dose to Water based on Water Calorimetry

Seuntjens J.

Laboratorium Standaarddosimetrie
Vakgroep Fysica Biomedische Wetenschappen
Universiteit Gent
Proeftuinstraat 86, B-9000 Gent
E-mail jan.seuntjens@rug.ac.be

Abstract

This paper describes some general features (construction, calibration, correction factors and heat defect) of a primary standard absorbed dose water calorimeter. The heat defect, the most fundamental constraint of the water calorimeter, can be controlled by either pre-irradiating the water to a high dose or by using well defined impurities in the water and studying the response of the calorimeter both experimentally and calculating the heat defect theoretically. We are examining these approaches, successfully used in low LET radiation (10 MV photons), also in clinical proton beams where the conventional dosimetric methods are more uncertain. We also give an example of a situation where the water calorimeter has served to improve radiotherapy dosimetry of medium energy x-rays.

1. Introduction.

Current codes of practice for clinical dosimetry of high energy photon and electron beams are based on the calibration of ionization chambers free-in-air in terms of air-kerma at ^{60}Co radiation (e.g. see IAEA, 1987). Absorbed dose to water (D_w) in clinical standard conditions, on which the accelerator prescriptions and planning systems are based, is obtained through the application of a number of correction and conversion factors which depend on beam quality and chamber type. Using these concepts, the overall uncertainty of an absorbed dose determination in clinical

standard conditions is of the order of 3.5% for photon beams and larger for electron beams whereas the accuracy required in a patient situation may be 5% and in some cases even 3% (IAEA, 1987).

Recent work has pointed out serious problems with present air-kerma standards in connection with wall effects, leading to systematic errors of up to 1% (Rogers and Bielajew, 1990). So, although primary standards dosimetry laboratories' (PSDL's) air-kerma standards agree worldwide to within 0.2%, there is very few information about the uncertainty on absolute air-kerma in reference conditions as all standards labs use the same technique in determining air-kerma. Likewise, this worldwide consistency obviously does not tell us anything about consistency in dosimetry at other radiation qualities than ^{60}Co . Finally, the air-kerma system requires the use of a conceptually awkward formalism in which the conversion factors hide many physical effects.

Recently, major PSDL's have developed a wide variety of absorbed dose standards in order to be capable of reducing the overall uncertainties for a clinical standard situation. In Gent, we have choosen for the option of building an absorbed dose water calorimeter with the aid of which one is capable of measuring absorbed dose to water for a range of radiation qualities going from medium energy X-rays, high energy photon and proton beams.

2. Water Calorimetric Dose Measurement

Absorbed dose to water D_w is measured directly, at a point, by measuring the temperature increase ΔT_w at that point and using following equation:

$$D_w = c_w \cdot \Delta T_w \cdot k_c \cdot k_{sc} \cdot \frac{1}{1-h} \quad (1)$$

where:

c_w : the specific heat capacity of water at the calorimeter operating temperature;
 k_c, k_{sc} : correction factors for heat loss due to conduction and for perturbation effects of non-water materials (scatter and absorption of radiation in non-water construction materials);

h : heat defect due to radiolysis induced chemical reactions.

The typical temperature increase amounts to 240 μK per Gy absorbed dose which should be measured with an accuracy of better than 1%. Figure 1a shows a schematical diagram of the 'Gent water calorimeter' and figure 2 an overall

schematic diagram of the electrical setup. The calorimeter primarily consists of a water phantom (30 cm x 30 cm x 30 cm) stabilized at 4°C in order to eliminate convection. The calorimeter phantom is enclosed in a wooden box, in which stabilized air is circulating. Rough water and air temperature are measured using calibrated platinum resistors connected to a 4 wire digital ohmmeter providing an absolute accuracy of 0.01°C and a resolution of 0.001°C. The temperature rise caused by irradiation is measured using thermistors built in small (0.7 mm diameter) glass capillaries. These glass probes are positioned in a 4 cm diameter detection vessel shown in figure 1b, which in turn is suspended in the water phantom (figure 1a). The detection vessel is filled with high purity water and can be bubbled with gases so as to establish a desired physico chemical system (see further).

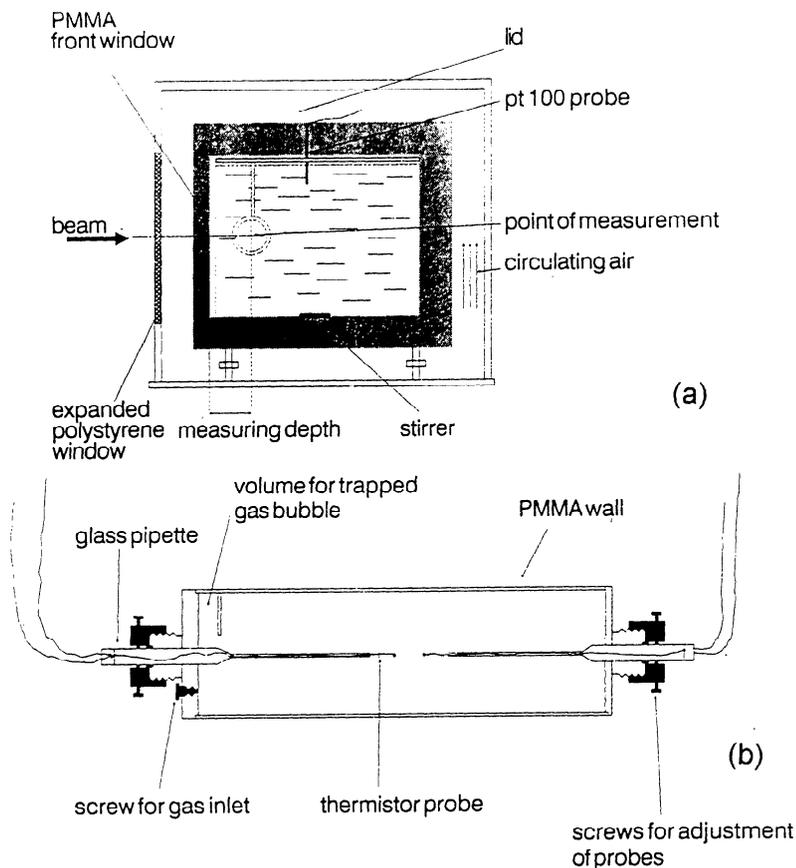


Fig.1 : a) Schematic diagram of the water calorimeter
 b) Schematic diagram of the detection vessel

The water temperature increase ΔT_w in equation 1, is derived from measurement of the relative resistor change of the thermistors, $\Delta R/R$, and applying following equation:

$$\Delta T_w = \frac{\Delta R}{R} \cdot \frac{T_w^2}{\beta} \quad (2)$$

where β is the thermistor material constant derived from calibration of the thermistors against standard thermometry and T_w is the actual water temperature (PT100 probes). Electrically, the thermistor probes are serially connected to a one arm bridge circuit. The bridge is powered by an AC signal of 1 V (rms) and a frequency of 73 Hz. The bridge output is connected to a lock-in amplifier where the resistive and capacitive part of the output signal are extracted and amplified.

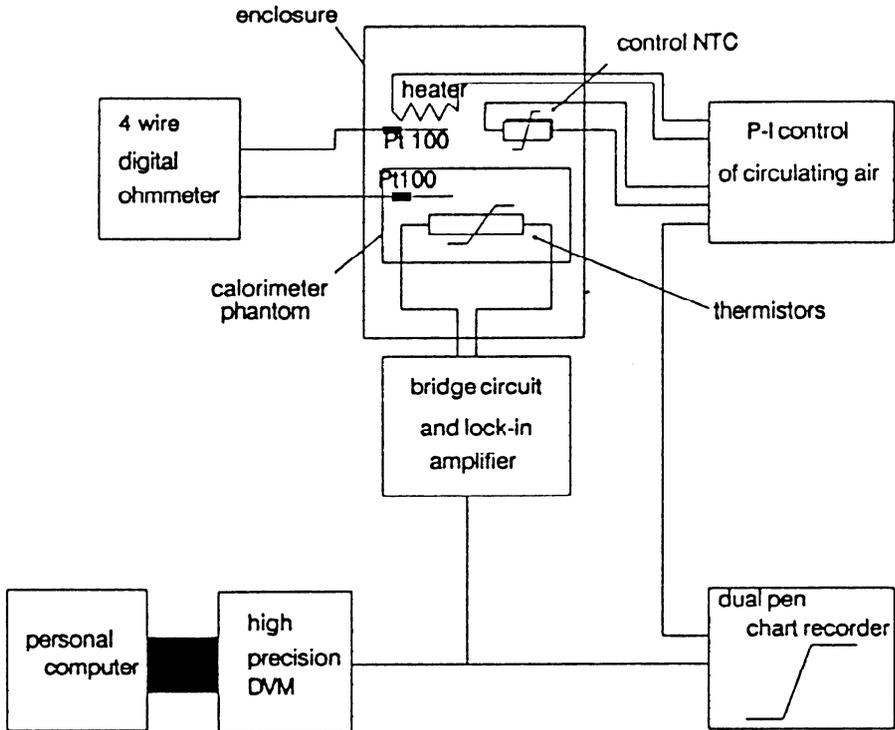


Figure 2. Overall schematic diagram of the electrical setup

The output of the lock in amplifier is connected with a high precision DVM and a PC for signal analysis and to one channel of a dual pen recorder. Calibration of the output voltage of the bridge circuit is made by adding a well known calibrated $1\ \Omega$ resistor to the bridge circuit and measuring the corresponding output voltage change, ΔV_c , as illustrated in figure 3 where a 'calibration run' and an 'irradiation run' (0.9 Gy/min) are shown. In this way, the signal DV_r obtained by linear extrapolation of pre- and post- irradiation drift curves to mid-run, is converted into a fractional resistor change ($\Delta R/R$). Corrections for changes in thermistor power dissipation (and excess heat) during irradiation and calibration runs are made.

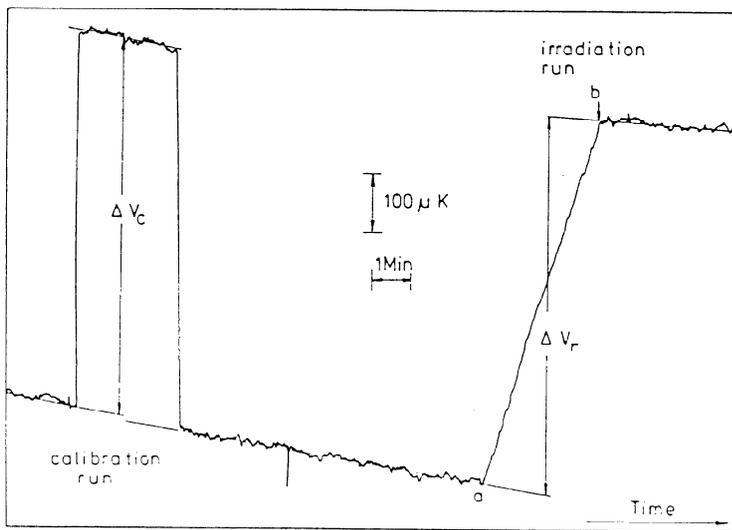
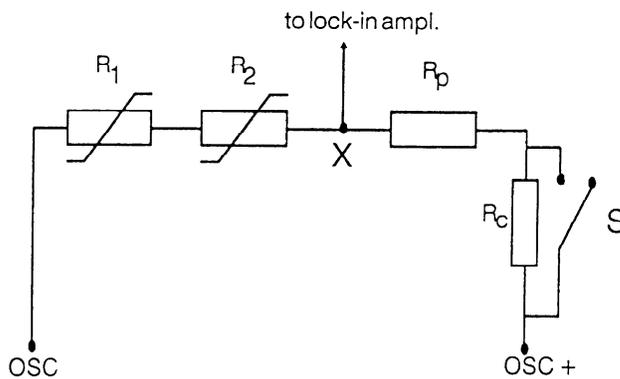


Figure 3. Typical recorder tracing showing a 0.9 Gy/min run preceded by a bridge calibration involving the switching of a $1\ \Omega$ resistor.

3. Correction Factors and Heat Defect

The water calorimeter reading is disturbed by three effects. Firstly, the measured temperature increase is influenced by heat loss as the radiation induced temperature profile in the water tank is not uniform and non-water construction materials (probes, detection vessel) act as sources of excess heat. Secondly, radiation is absorbed and scattered by non-water construction materials influencing the measured absorbed dose. Thirdly, not all the energy absorbed (E_a) will appear as a temperature rise i.e. there will be a *heat defect*.

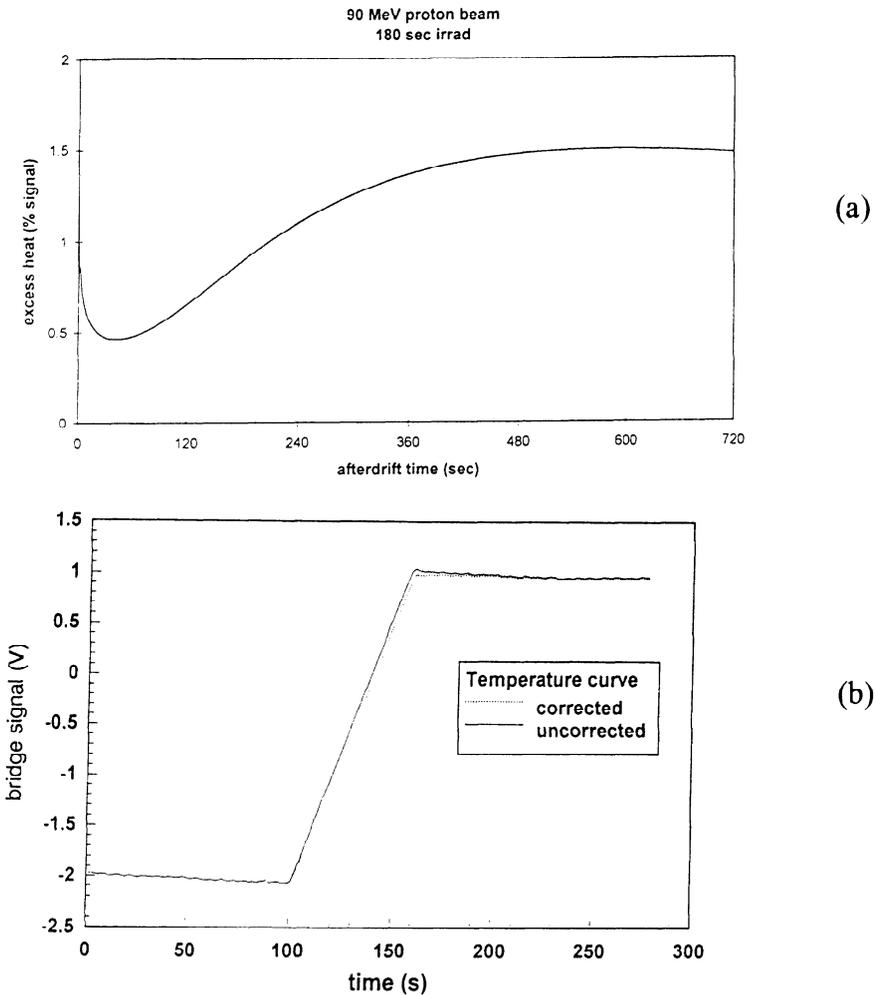


Figure 4. (a) Excess heat ((true signal - ideal signal) / ideal signal) after a 180 s proton irradiation of the calorimeter.
(b) 60 s calorimeter run (4 Gy/min) uncorrected (full line) and corrected for excess heat (dotted line).

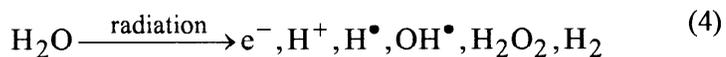
For the first type of problems, involving the integration of the heat transport equation with specific boundary conditions, we have applied numerical finite difference calculations in an r,z coordinate system.

An example of such a calculation is shown in figure 4a where the excess heat ((true signal - ideal signal)/ideal signal) is plotted after a 180 s proton irradiation of the calorimeter. The initial reduction of the signal is due to excess heat conducting away from the probes, whereas the rise after about 60 s comes from excess heat produced in the vessel wall and conducted towards the measuring point. Figure 4b shows a 60 s calorimeter run (4 Gy/min) both uncorrected (full line) and corrected for excess heat (dotted line) showing a significant improvement in signal linearity. The secondly mentioned effects are generally small and are calculated by Monte-Carlo simulations of the radiation transport in the calorimeter. A correction factor is derived as the ratio of the dose in water and the dose in the calorimeter calculated with presence of non-water materials. In order to reduce the uncertainty on the ratio, use is made of a correlated sampling variance reduction method in which the particle trajectories not influenced by the foreign materials are only transported once. For medium energy X-rays correction factors are of the order of 0.1% up to 0.3% for the lower energy qualities. For high energy photons the correction can generally be ignored.

The thirdly mentioned effect, the heat defect, is the most fundamental constraint of the water calorimeter to which a lot of scientific work has been directed. The heat defect h is defined as:

$$h = \frac{E_a - E_h}{E_h} \quad (3)$$

where E_a represents the energy actually absorbed and E_h the energy appearing as a temperature rise. A negative h represents an exothermal heat defect; h is positive for an endothermic heat defect. Ross *et al* (1989) have shown that the heat defect of water is primarily a result of chemical induced radiolysis of water. When water is irradiated, it will be decomposed into radicals and a number of unstable species i.e.



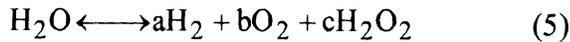
These species are present after 10^{-7} s in known proportions determined by the type of radiation (i.e. LET) and take part in the set of chemical reactions shown in table 1.

Table 1. Most important chemical reactions involved in the radiolysis of water
(taken from Klassen and Ross, 1991; with permission).

Reaction	Rate constant ^a	Reference
$e_{aq}^- + H_2O \rightarrow H + OH^-$	1.90×10^7	(b)
$e_{aq}^- + e_{aq}^- \rightarrow H_2 + 2OH^-$	5.50×10^9	(b)
$e_{aq}^- + H^+ \rightarrow H_2 + OH^-$	2.50×10^{10}	(c)
$e_{aq}^- + OH \rightarrow OH^-$	3.00×10^{10}	(c)
$e_{aq}^- + H^+ \rightarrow H$	2.30×10^{10}	(b)
$e_{aq}^- + H_2O_2 \rightarrow OH + OH^-$	1.10×10^{10}	(b)
$e_{aq}^- + O_2 \rightarrow O_2^-$	1.90×10^{10}	(d)
$e_{aq}^- + O_2^- \rightarrow HO_2^- + OH^-$	1.30×10^{10}	(c)
$H + H_2O \rightarrow H_2 + OH$	1.00×10^4	(b)
$H + H \rightarrow H_2$	7.75×10^9	(b)
$H + OH \rightarrow H_2O$	7.00×10^9	(b)
$H + OH^- \rightarrow e_{aq}^- + H_2O$	2.20×10^7	(b)
$H + H_2O_2 \rightarrow OH + H_2O$	5.00×10^7	(d)
$H + O_2 \rightarrow HO_2$	1.35×10^{10}	(d)
$H + HO_2 \rightarrow H_2O_2$	1.50×10^{10}	(b)
$OH + OH \rightarrow H_2O_2$	3.60×10^9	(d)
$OH + O^- \rightarrow HO_2^-$	2.00×10^{10}	(b)
$OH + H_2 \rightarrow H + H_2O$	4.20×10^7	(b)
$OH + OH^- \rightarrow O^- + H_2O$	1.30×10^{10}	(b)
$OH + H_2O_2 \rightarrow HO_2 + H_2O$	2.70×10^7	(b)
$HO_2 \rightarrow O_2^- + H^+$	8.00×10^5	(c)
$O_2^- + H^+ \rightarrow HO_2$	4.50×10^{10}	(c)
$OH + HO_2^- \rightarrow OH^- + HO_2$	7.50×10^9	(b)
$OH + HO_2 \rightarrow H_2O + O_2$	6.00×10^9	(b)
$OH + O_2^- \rightarrow OH^- + O_2$	8.00×10^9	(b)
$O^- + H_2O \rightarrow OH + OH^-$	1.80×10^6	(b)
$O^- + H_2 \rightarrow H + OH^-$	8.00×10^7	(c)
$O^- + H_2O_2 \rightarrow O_2^- + H_2O$	2.00×10^8	(c)
$O^- + O_2 \rightarrow O_2^-$	3.60×10^9	(b)
$HO_2 + HO_2 \rightarrow H_2O_2 + O_2$	8.30×10^5	(b)
$HO_2 + O_2^- \rightarrow H_2O_2 + O_2 + OH^-$	9.70×10^7	(b)
$H^+ + OH^- \rightarrow H_2O$	1.43×10^{11}	(c)
$H_2O \rightarrow H^+ + OH^-$	2.60×10^{-5}	(c)
$O_2^- + H_2O_2 \rightarrow OH + OH^- + O_2$	1.00	(e)
$HO_2 + H_2 \rightarrow H + H_2O_2$	1.00	(e)
$O_2^- + H_2O_2 \rightarrow O_2^- + O_2 + H_2O$	1.60×10^6	(c)
$O_3^- \rightarrow O_2 + O^-$	3.00×10^2	(c)
$O_2^- + H_2 \rightarrow O_2 + H + OH^-$	2.50×10^5	(c)
$H^+ + HO_2^- \rightarrow H_2O_2$	2.00×10^{10}	(c)
$H_2O_2 \rightarrow H^+ + HO_2^-$	3.56×10^{-2}	(c)
$O_2 \rightarrow O_{2,gs}$	9.58×10^{-4}	(f)
$O_{2,gs} \rightarrow O_2$	3.63×10^{-5}	(f)
$H_2 \rightarrow H_{2,gs}$	1.92×10^{-3}	(f)
$H_{2,gs} \rightarrow H_2$	4.40×10^{-5}	(f)

(a) Second order rate constants are $\text{mol}^{-1} \text{dm}^3 \text{s}^{-1}$, first order constants are s^{-1} . (b) Buxton *et al.* (1988). (c) Boyd *et al.* (1988). (d) Elliot (1989). (e) Bielski *et al.* (1985). (f) See text for explanation.

This system of reactions (for pure water) leads to a number of stable products which are both formed by forward reactions and consumed by back reactions:



The heat defect is determined by the energy balance of equation 5. When eq. 5 is in equilibrium the calorimeter is said to be in a steady state and the heat defect is zero. However, organic impurities present in the water may act as scavengers for some of the radicals and disturb the energy balance. There are generally two ways to overcome this problem. Firstly, the calorimeter can be irradiated until the impurities are used up and secondly one can deliberately add 'well defined' impurities and try to predict the heat defect based on the known reactions in which these impurities are involved. We have used both approaches in comparison with calculations of the heat defect. These calculations are based on kinetics of the chemical reactions involved (table 1 supplemented with reactions with impurities). Up to now we have used three chemical systems: pure (Argon saturated) water, O_2 saturated water, and a 1 mM NaCOOH (formate) solution saturated with O_2 . The

last of the three systems has a scavenger for OH radicals and produces a calorimeter response independent of accumulated dose; the other two systems require pre-irradiation. Figure 5 (taken from Seuntjens *et al*, 1993A) demonstrates the relative calorimeter response in the case of the formate system compared to the oxygen saturated system, which requires preirradiation of at least 150 Gy.

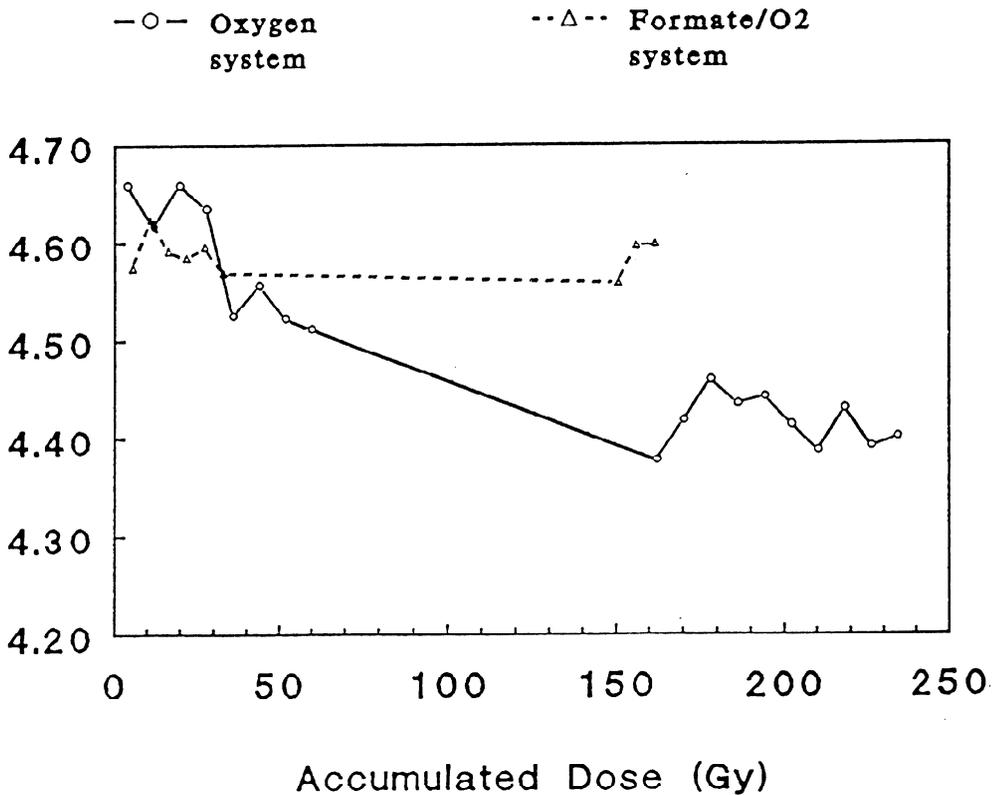


Figure 5. Relative calorimeter response in the case for the formate system (1mM NaCOOH water saturated with O₂) compared to the oxygen saturated system.

According to the calculations, in low LET radiation the three systems produce heat defects of 0.1% (endo), 2.1% (endo) and -2.4% (exo) respectively. Figure 6 shows measurements with the calorimeter in comparison with Fricke dosimetry for 10 MV and 25 MV photon beams for the three mentioned chemical systems. The dashed lines are calculated heat defects and the points represent the calorimeter dose divided by the Fricke dose.

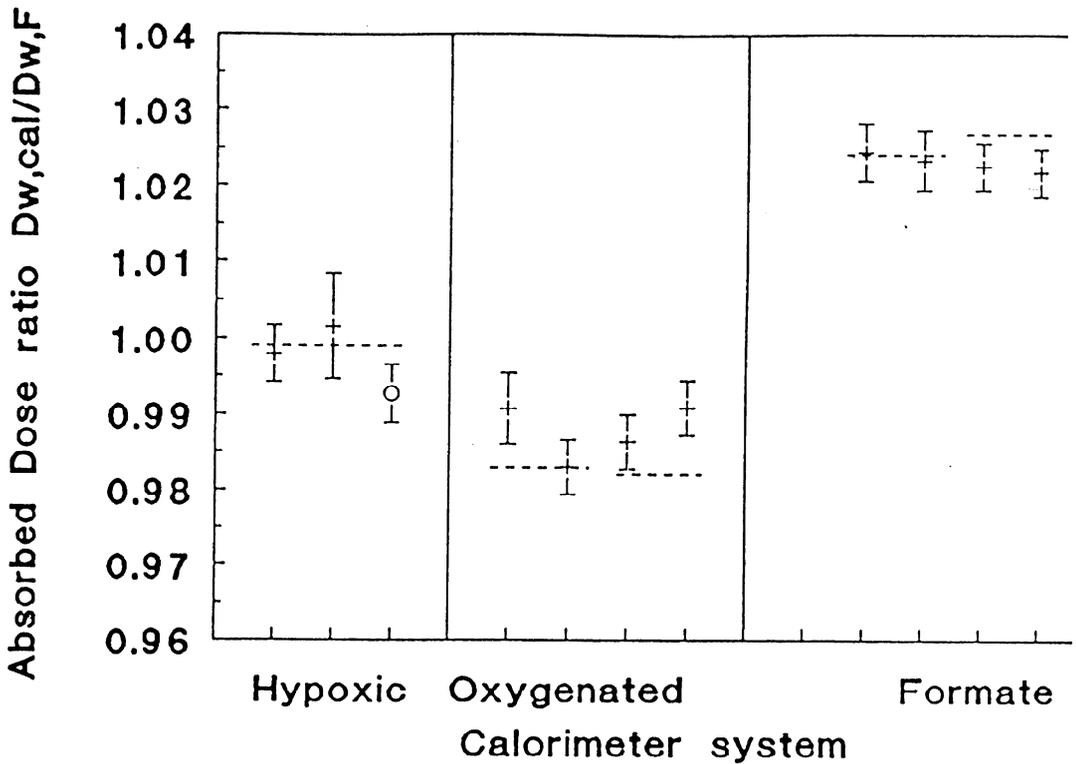


Figure 6. Comparison of calorimetry with Fricke dosimetry for 10 MV and 25 MV photon beams for the pure water system, the O_2 saturated system and the 1 mM NaCOOH solution saturated with O_2 . For this comparison an ϵ_G value for the Fricke dosimeter of $352 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{Gy}^{-1}$ was used.

Figure 6 shows that the response of the calorimeter with the Formate system relative to the response with the pure water system is in excellent agreement with the model calculations. The agreement for the oxygen saturated system is less satisfactory because it is probably the most sensitive to the presence of impurities in the water. Our observations for this system confirm the observations of other workers with the same system (Klassen and Ross, 1991).

4. Water calorimetry in clinical proton beams

One of the significant advantages of the water calorimeter over the present primary standards is that it is a versatile standard i.e. the desired quantity can be measured directly in quasi any type of radiation beam. Although figure 6 demonstrates that

the heat defect is a well understood phenomenon for low LET radiation, this is less true for other types of radiation. We are currently investigating the suitability of our water calorimeter to act as a primary standard for clinical proton beams where the dosimetry is much more uncertain. In this investigation we concentrate on the study of the heat defect which is unknown in this type of radiation beam.

We follow the same approach as in low LET radiation beams i.e. compare the water calorimeter relative response for different physico chemical systems with model calculations of the heat defect. To this end, primary yields of the reactive species to be used as input in our calculations are necessary. The clinical proton beam is modulated by a rotating wheel of varying thickness thereby spreading out the Bragg peak of ionization in order to produce a uniform depth dose distribution. Since the LET of protons at the location of the Bragg peak can be very high, the proportions of reactive primary products present 10^{-7} s after the passage of such a particle through the water may differ significantly from the low LET situation.

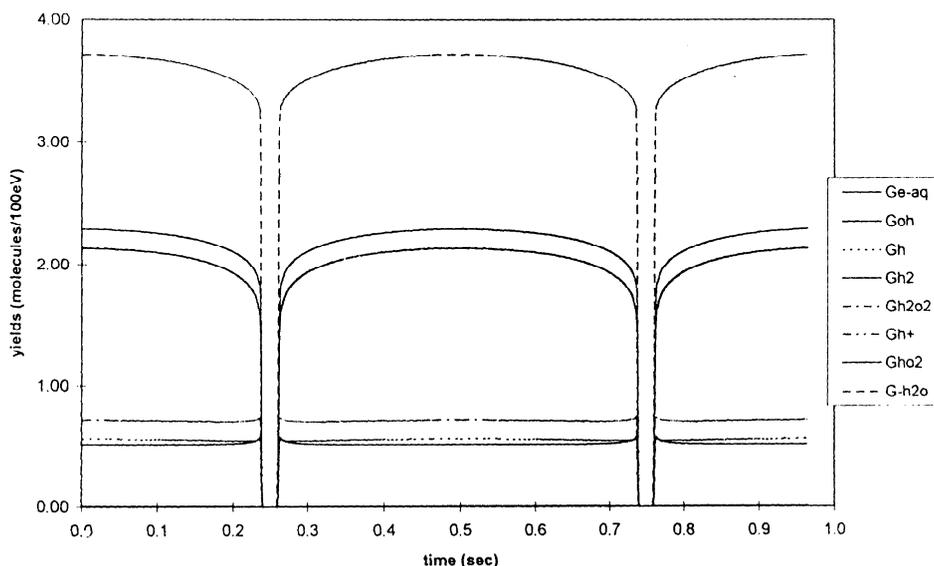


Figure 7. Estimate of primary products as a function of time for a 90 MeV modulated clinical proton beam

Figure 7 shows an estimate of yields of primary products as a function of time. The wheel rotates at a frequency of 1 Hz giving rise to the presented variation in primary yields. At specific time points the production of any specie ceases as there is no ionization at that moment. These primary yield variation are being used as input for the calculation of the heat defect for this beam type. Preliminary results of the heat defect calculations for the Formate/O₂ system show that the heat defect is only half the heat defect for low LET radiation i.e. -1.2% compared to -2.4%. The preliminary results of the experiments indicate the same tendency for the same chemical system (an average heat defect of -1.7% relative to pure water).

5. Achieved Optimization of Radiotherapy Dosimetry

We now give one example of a situation where the water calorimeter has served to improve radiotherapy dosimetry. In 1987, the IAEA published a protocol (IAEA, 1987) with a section specifically devoted to medium energy X-rays. According to the protocol the absorbed dose to water D_w can be derived from an in-phantom measurement M with an ionization chamber, which is calibrated for a specific X-ray quality (calibration factor N_K) by applying the formula:

$$D_w = M \cdot N_K \cdot \left(\frac{\bar{\mu}_{en}}{\rho} \right)_{w,air} \cdot k_u \cdot p_u \quad (6)$$

where $\frac{\bar{\mu}_{en}}{\rho}_{w,air}$ is the mass energy absorption coefficient ratio water to air,

evaluated at the reference point in the phantom and the product $k_u \cdot p_u$ represents a global correction factor. In the IAEA report, values for this correction factor were adopted deviating radically (up to 10% at 100 kV) from former recommendations (ICRU, 1973). In collaboration with the Physikalisch Technische Bundesanstalt we have performed measurements using the calorimeter constructed in Gent. The results, expressed in term of a correction factor to be used in combination with a cylindrical ionization chamber, are shown in table 2 which is from an update of the IAEA report in which our results are quoted (Seuntjens *et al*, 1993B; IAEA, 1993). The results show that cylindrical chambers require correction factors varying from 1% at 280 kV to 3% at 100 kV in contrast to the previous recommendations of the IAEA (1987).

Table 2. Overall correction factor ($k_{a,w} \equiv k_{u,p_u}$) for a free-in-air calibrated cylindrical NE2571 ionization chamber used to measure the absorbed dose in water in medium energy x-rays (taken from IAEA, 1993; with permission).

U kV	HVL Cu mm	$k_{a,w}$ -values derived from					Recommended values
		Extrapol.Ch.	Calorimetry	Combination	MC/Measurement.		
100	0.17	1.07 ± 0.04	1.04 ± 0.03	1.017 ± 0.025	0.998 ± 0.03	1.03	
120	0.28	1.06 ± 0.04	1.033 ± 0.02	1.020 ± 0.025	1.002 ± 0.03	1.03	
140	0.45	1.05 ± 0.03	1.027 ± 0.02	1.024 ± 0.02	1.004 ± 0.03	1.03	
150	0.82	1.03 ± 0.025	1.026 ± 0.02	1.021 ± 0.02	1.005 ± 0.03	1.02	
200	1.52	1.02 ± 0.025	1.008 ± 0.02	1.015 ± 0.02	1.004 ± 0.03	1.02	
250	2.52	1.01 ± 0.025	1.007 ± 0.02	1.010 ± 0.02	1.004 ± 0.03	1.01	
280	3.41	1.00 ± 0.025	1.014 ± 0.02	1.006 ± 0.02	1.000 ± 0.03	1.01	

6. Conclusions

In this talk we have described the construction and measuring methods to use an absorbed dose water calorimeter as a primary standard for absorbed dose to water. For low LET radiation, we have shown that the heat defect can be controlled by either pre-irradiating the water to a high dose or by using well defined impurities in the water and studying the response of the calorimeter both experimentally and theoretically. We are now investigating the versatility of the standard by using it in other radiation beams i.e. clinical proton beams where the dosimetry is much more uncertain. We have also given an example of a situation where the water calorimeter has served to improve radiotherapy dosimetry.

7. References

IAEA (1987) Absorbed Dose Determination in Photon and Electron Beams, An International Code of Practice (Tech. Rep. Series 277) (Vienna: IAEA)

IAEA (1993) Review of data and methods recommended in the International Code of Practice: IAEA Tech. Rep. Series No 277 Absorbed Dose Determination In Photon and Electron Beams. Proc. of a consultants meeting organized by the IAEA. 8-11 december, 1992 (Vienna: IAEA)

ICRU (1973) Measurement of absorbed dose in a phantom irradiated by a single beam of x or gamma rays. Report 23. International Commission on Radiation Units and Measurements. Bethesda, USA.

Klassen N.V. and Ross C.K. (1991) Absorbed dose calorimetry using various aqueous solutions. *Radiat Phys Chem* 38: 95-104

Rogers DWO and Bielajew AF (1990) Wall Attenuation and Scatter Corrections for Ion Chambers: Measurements versus Calculations. *Phys. Med. Biol.* 35: 1065-1078

Ross C.K., Klassen N.V., Shortt K.R. and Smith G.D. (1989) A direct comparison of water calorimetry and Fricke dosimetry. *Phys. Med. Biol.* 34 23-42

Seuntjens J, Van der Plaetsen A., Van Laere K. and Thierens H. (1993A) Study of correction factors and the relative heat defect of a water calorimetric determination of absorbed dose to water in high energy photon beams. IAEA-SM-330/6. In: Measurement Assurance in Dosimetry. Proceedings of a Symposium, Vienna 24-27 May, 1993 p 45-59. (Vienna: IAEA)

Seuntjens J, Thierens H and Schneider U (1993B) Correction factors for a cylindrical ionization chamber used in medium energy x-ray beams. *Phys. Med. Biol.* 38: 805-832

Samenvatting

Dit artikel beschrijft enkele algemene eigenschappen en methodes (zoals constructie, calibratie, correctiefactoren en warmte-defect) van een primaire standaard watercalorimeter. Het warmtedefect, dat beschouwd kan worden als de meest fundamentele beperking van de watercalorimeter, kan worden beheerst door ofwel de calorimeter voor te bestralen tot een hoge dosis ofwel door

gebruik te maken van welgedefinieerde onzuiverheden in een experimentele studie van de respons in vergelijking met berekeningen van het warmte defect. Momenteel worden deze benaderingswijzen, welke voor lage LET straling (10 MV fotonen) succesvol gebruikt werden, toegepast voor een klinische protonenbundel waar de conventionele dosimetrische methoden onzeker zijn. We geven ook een voorbeeld van een situatie waar de watercalorimeter heeft geleid tot verbeterde dosimetrie van medium energie x-stralen bundels.

Résumé

Cet article décrit quelques caractéristiques et méthodes générales (comme la construction, la calibration et le déficit thermique) d'un calorimètre à eau primaire. Le déficit thermique, ce qui peut être considéré la restriction la plus fondamentale du calorimètre à eau, peut être contrôlé par préirradiation jusqu'à une dose élevée ou, alternativement, par utiliser des impuretés spécifiques dans une étude expérimentale de la réponse en comparaison avec des calculs du déficit thermique. Pour le moment nous sommes en train d'utiliser ces méthodes, qui ont été appliquées avec succès pour la radiation au transfert linéaire d'énergie (LET) faible (des photons du potentiel d'accélération 10 MV), pour un faisceau des protons cliniques, ou les méthodes dosimétriques conventionnelles sont plus incertaines. On donne aussi un exemple d'une situation où le calorimètre à eau a résulté à la dosimétrie améliorée des rayons x faibles.

Neutron Detection based on Superheated Drops

Filip Vanhavere
SCK/CEN

1. Abstract

In radiation protection there is a growing concern for neutron dosimetry. The increased quality factors and the reduction of the annual dose equivalent limits for radiation workers in the ICRP 60 are threads indeed. Next to the already numerous difficulties associated with performing neutron dosimetry these magnify the need for more accurate, more sensitive and certainly more reliable methods.

A fairly new method that has the possibilities of solving many existing and future problems is neutron detection based on superheated drops. This paper summarises the main qualities and characteristics of these bubble detectors. The commercially available forms of these detectors are summed up, comparison is made with other dosimetric methods and present and future applications are given.

2. History

Radiation detection based on radiation sensitivity of superheated liquids has been studied for quite some time. It is known that a liquid can be raised to a temperature higher than its boiling point without vaporizing. The liquid may remain in this superheated state for an extended period and in general boiling can be initiated by (i) the presence of heterogeneous nucleation sites such as microscopic air bubbles, gas pockets, solid impurities, etc. (ii) radiation interaction or (iii) homogeneous nucleation caused by large scale density fluctuations at molecular level.

The bubble chamber discovered by Glaser [1] utilises the initiation of boiling of superheated liquid by nuclear radiation to visualize the tracks of particles. Until the late 70's little serious thought has been given to the idea of using the bubble chamber for dosimetric purposes. In 1979 Apfel [2] came up with the Superheated Drop Detector SDD [3], a collection of superheated liquid drops in a holding gel-like medium. Superheated drops in such a host are continuously sensitive miniature bubble chambers. It has been shown that the vaporization of one superheated drop is an independent event and does not effect adjacent drops. Therefore, the repressurisation procedure for the traditional bubble chambers is avoided. Such a detector needs no power source because the drops themselves represent stored

mechanical energy that is released when triggered by radiation.

3 . Theory

The fundamental mechanism of bubble formation takes place in essentially three steps. First, a neutron interacts with the superheated liquid in the droplet and produces energetic recoil ions. These charged particles in turn deposit their energy over a given range of travel through the liquid. If sufficient energy is added to a small enough volume of liquid, a critical (small) bubble forms and then proceeds to vaporize the entire droplet.

Chlorofluorocarbon refrigerants are generally used as the superheated liquids in bubble detectors. For a polyenergetic neutron radiation field (0,025 eV to 14 MeV), the only nuclear reactions found of any consequence are elastic scattering, inelastic scattering and the charged particle production: $^{35}\text{Cl} (n,p) ^{35}\text{S}$. Using nuclear data libraries and knowing the incident neutron spectrum, it is possible to calculate both the energy and spatial distributions of every charged particle resulting from these reactions [4]. Also the linear energy transfer (LET) or stopping power (dE/dx) of a recoil ion can be calculated.

The basic reason that superheated liquids can exist is that the bubble-nucleation step requires that a vapour embryo of a minimum size must be achieved. Vapour embryo-bubbles with less than the critical size are unstable and tend to collapse. In the generally accepted thermal spike theory of Seitz [5] it is presumed that the energy deposited by the moving charged particle vaporises a small amount of liquid along its path. This seed bubble begins to expand as it receives more thermal energy and as the shock wave propagates outwards into the surrounding liquid. If this bubble grows to a critical size with radius r_c then it will continue to expand by evaporating more and more of the liquid. However, if the amount of energy transferred from the travelling charged particle is less than the critical amount E_c required to generate a bubble of critical radius, then no vaporisation will occur. One can calculate for instance that 16 keV is necessary to nucleate Freon-12 droplets at 20°C.

Knowing the effective length L over which a charged particle transfers energy, it is possible to determine exactly how much energy any particular ion must have to deposit the minimum required energy. Integrating this information with the previously determined distribution of recoil energies, one can calculate the fraction of ions expected to have more than this requisite energy. This fraction is called the efficiency factor F and will be a function of the temperature and the incident neutron energy E_n . One can see that there will be a certain threshold temperature and neutron energy for nucleation to be possible. The response of a bubble neutron dosimeter will vary directly with the amount of superheated liquid, the magnitude of the neutron flux and this efficiency factor of each constituent in

the liquid.

One important factor, which was not considered is the neutron slowing down effect. That is, although several keV neutrons are not energetic enough to directly trigger bubbles in Freon-12, they have a short mean free path (<1 cm) and can easily slow down or thermalize in the gel matrix and then trigger bubbles via the $^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$ reaction. This reaction is the reason for the thermal response of bubble detectors.

4. Present forms of the neutron detectors based on superheated liquids.

a) Neutrometer - Apfel Enterprises

In the original detector developed by Apfel the droplets can remain above their boiling point and immobile for a long period until triggered by a charged particle, e.g. a neutron recoil. If the density of energy deposition of this particle exceeds a critical value the droplets explode into a vapour bubble which rises slowly to the surface. The total amount of vapour evolved from the radiation-induced nucleation of drops can serve as an integrated measure of the total exposure of the detector. It is on this principle that the Neutrometer operates.

The Neutrometer is 12,5 cm tall and holds approximately 0,5 ml of semisolid medium with some 8000 drops of 100 microns diameter of a composition named Freon-12 [6]. The Neutrometer can be used until the number of drops in the liquid is too low.

One of the main disadvantages of all superheated drop detectors has always been the temperature dependence. To solve this recently a temperature-compensated version of the Neutrometer became available. This unit uses a volatile liquid to compensate partially for the temperature dependence of the composition with a pressure change. No thorough investigation of the characteristics of these devices has been published yet.

b). The Apfel Survey Meter - Apfel Enterprises

The Apfel Survey Meter has the same properties as the Neutronmeter[7]. The difference lies in the way of detecting the events. When a neutron impinges on a drop, the drop suddenly boils and changes into a bubble. Such a bubble formation is accompanied by a pressure pulse that is detected by acoustical transducers surrounding the superheated drop detector. By doing this the accuracy improved and software upgrades permit flexibility of use.

c). The BD 100R / BD 100R PND - Bubble Technology Industries

A type of detector related to the ones developed by Apfel was described by Ing and Birnboim in 1986 [8] and is now manufactured by B.T.I. In these detectors the superheated droplets are dispersed in a much stiffer elastic polymer so that any bubbles that are formed remain permanently in position. Like this they can be counted visually by the eye or an automatic reader any time after the irradiation. Another major difference is that the detectors can be reset by recompressing the bubbles back to droplets. A schematic diagram of the BD 100R is shown in figure 1.

It consists of a glass test tube 18 mm diameter and 118 mm tall, which is sealed with a screw top. Under these conditions the detector is insensitive to radiation. Just before use, the pressure is released by unscrewing the top and superheating the liquid droplets.

Recently also BTI came up with a temperature compensated version, the BD 100R PND.

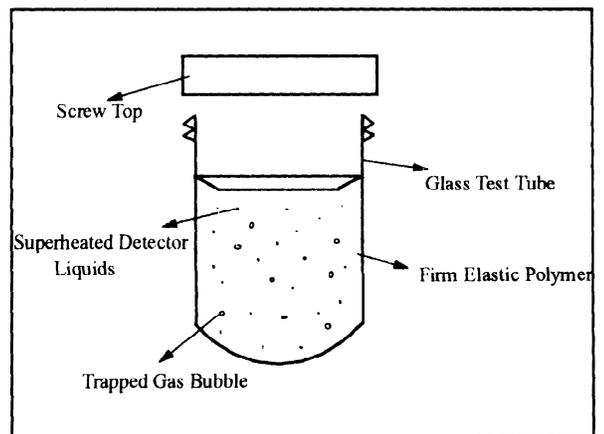


Figure 1: The BD 100R Bubble Detector

d) Bubble Detector Neutron Spectrometer BDS - BTI

The BD 100R is meant to be used as a dosimeter and has a neutron energy threshold of 100 keV. It is possible to change this threshold by changing the amount of superheat of the liquid droplets. Thus a neutron needs less or more energy to trigger the bubble formation.

The BDS spectrometer consists of a set of six threshold detector tubes similar to the BD 100R with nominal thresholds at 10, 100, 600, 1500, 2500 and 10000 keV neutron energy. The devices are also read out by counting the number of bubbles and give a crude spectrometric analysis of the existing neutron field. The BDS spectrometer will be of interest to researchers and dosimetrists who have a need to quickly characterize neutron fields in a low resolution sense.

4. Results of experiments

a) Use of the superheated drop detectors:

The BTI detectors have to be sensitized before use. This means that the plastic seal has to be removed and the cap should be unscrewed. The manufacturer says that a shelf life of one year at ambient temperature is normal for the BD 100R. According to Ing [9] 100% of the sensitivity is obtained when the BD 100R is used within 8 hours after sensitization. This can be seen on figure 2.

They begin to fail after 16 to 30 days of continuous use [10]. When they are carried as personal dosimeters best is to repressurize the detectors

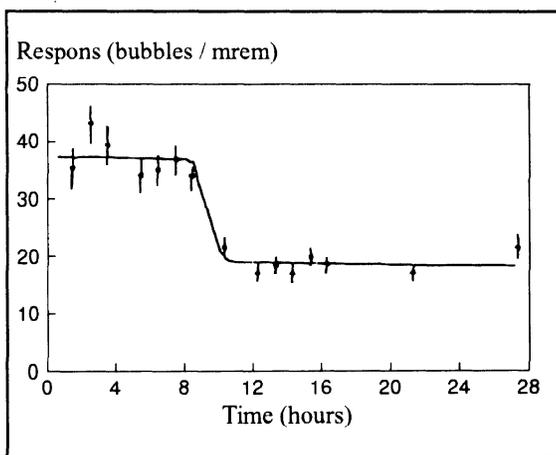


Figure 2: The change in response of one type of bubble detector with time after it is sensitized [9]

every day to keep the sensitivity and because the longer they are left with bubbles, the harder they are to recompress.

The bubble detectors with a low amount of bubbles can be counted by eye. With some experience, detectors can be accurately counted manually with up to approximately 80 bubbles. A video camera/monitor system or photographs can be used as the basis of a more sophisticated bubble counting system. BTI offers also an automatic counting system namely the BDR-Series II. After the bubbles are formed, no fading has been noticed. The bubbles continue to grow after vaporisation.

The Apfel detectors work on a different principle. They are not reusable and measure the integrated radiation exposure. It is possible to use the SDD and Neutrometer intermittent without degradation in response [6,7].

b). Batch uniformity:

The number of bubbles appearing when exposed to a neutron source depends on the sensitivity of the detector. On this reported sensitivity there is a quite large variation, inherent to the stochastic process of creating the bubbles. Also, there is an uncertainty on the number of droplets and the amount of superheat. So when exposing a batch of bubble detectors to the same neutron source different amounts of bubbles will result. Mostly the reported standard deviation is about 15 to 20% for BD 100R.

c). Repeatability:

This only goes for the BTI-detectors who can be reused by retreading the piston back in its original orientation and then screwing it down. The detector needs about ten minutes to be cleared permanently. If bubbles have been present for an extended period, the detector may need up to one hour to remove the bubbles. The manufacturer claims a useful life of three months if recycled daily for the BD 100R PND.

Liu and Sims [11] concluded that the more frequently the bubble detector is recompressed, the longer the lifetime and the better the stability of the bubble detector was. This all has to do with deformation of the gel surrounding the bubble. Many bubble detectors have been used for over seven months with no indication of sensitivity loss.

d). Linearity:

Again we start with the BTI detectors. For neutrons above the threshold, the

sensitivity depends on the total volume of all the droplets and detectors are available with a wide range of sensitivities from 0,033 to 3,3 bubbles per microSv. For special applications even some bubbles per Sv can be obtained. As a result, the minimum measurable dose equivalent is that corresponding to some bubbles and can be made 1 microSv, lower than any other small personal neutron dosimeter. The range over which the bubbles, counted in a particular detector, are proportional to the dose is restricted. The number of bubbles counted usually becomes non proportional when the bubbles overlap. The number of bubbles that can be counted by eye with least error and trouble is around 50 to 70 while automatic counters can reliably count at least 500 of them.

The Apfel detectors are continued to be used until a significant fraction of the droplets has been used up. No bubble detector was reported to be dose rate dependent.

e). Energy dependence:

Let us start with the Apfel detectors. We can compare the measured energy dependence with one that was calculated as shown in the theory section [12], figure 3. In general the experimental results agree with the calculations reasonably well. The energy threshold can be seen clearly while the response to lower energies is due to the $^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$ reaction. Above the threshold the response is constant within a factor of about two, up to 14 MeV. Other measured energy responses can be found in [7,13,14].

Also, with the BTI detectors there is a reasonably flat energy response above the threshold. Results are found in [9,11,14,15,16].

In figure 4 the response of the detector per unit dose is presented. The ideal neutron dosimeter should have a flat response per dose equivalent over all neutron energies. This is approximately so when the albedo response (because of the chlorine reaction) is included as is seen in figure 4. Note that here the new quality factors from ICRP 60 are not included. These cause the curve of dose equivalence versus neutron energy to have abrupt discontinuities at several energies. No physical

phenomenon will likely be able to follow these discontinuities. BTI says that the BD 100R response approximates the new dose equivalent curve quite well over the energy range 200 keV to MeV. The approximation is probably better than with reference to the current dose equivalent curve.

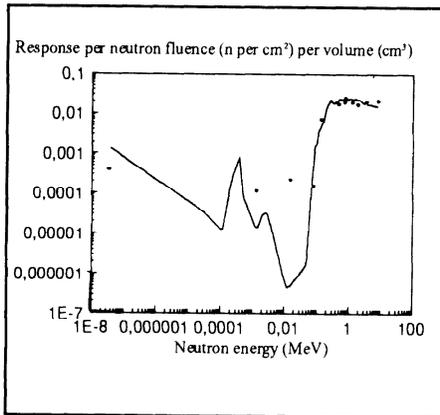


Figure 3: Theoretical model's predicted response for Freon-12 [12]

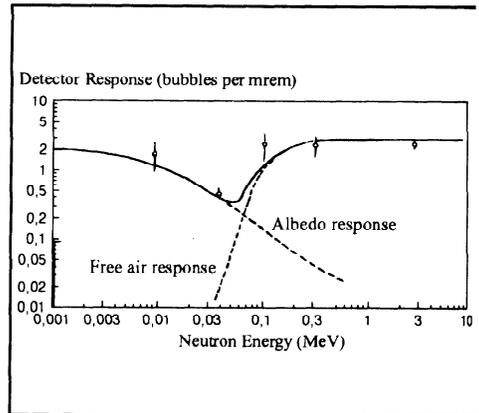


Figure 4: Dose equivalent response of a BD 100R with neutron energy when worn as a personal dosimeter. The response is the sum of the free air and the albedo response [9]

f) Temperature:

Since the degree of superheat in a given detector material depends on ambient temperature, the threshold energy and the detection sensitivity are temperature dependant. Temperature corrections can be made using the temperature dependence curve provided by the manufacturer. For the uncompensated BD 100R the change in sensitivity in the recommended temperature range of 10-35°C is reported in several articles [6,7,17,18,19] and is typically 5 a 7 % per °C. At a temperature of approximately 46°C the bubble detectors completely self-nucleate. Recently temperature compensated versions of both the Apfel and the BTI detectors became available. No results are published yet but the BD 100R PND is said to be completely insensitive to temperature variations and the Neutrometer's temperature dependence is reduced to 1,2 % per °C [6].

g). Response to other radiations:

At low energies gamma rays interact mainly with electrons and this is not very efficient at depositing their energy locally. So in view of the theory of bubble formation it is only at energies greater than 6 MeV, where the photon energy is comparable to the binding energy per nucleon, that bubble detectors are expected to respond to photons.

6 . Discussion

a). Comparing bubble dosimeters with LiF albedo TLD's:

Bubble neutron dosimeters are better in discriminating against gamma rays. They have a limited dynamic range, while TLD's span the range from environmental to life threatening doses. Albedo response varies by orders of magnitude with neutron energy, while bubble response is close to the dose equivalent. Bubble dosimeters respond rapidly and have a limited life, while LiF TLD's measure long exposures and survive for years. Both dosimeters fail at elevated temperature. TLD's by that need post treatment after exposure to read the doses.

b). Comparing bubble dosimeters with CR-39:

Bubble dosimeters have almost no background and are activated at the point of use. CR-39 has a background due to defects in the material, and begins to accumulate dose as soon as it is made. CR-39 has a greater dynamic range and it is stable in environments that would destroy the bubble detector. As far as the energy and angular response of them are concerned both the dosimeters may be acceptable from the radiation protection point of view. Still the bubble detectors are much more sensitive and therefore more attractive for personnel neutron dosimetry. On the other hand the temperature dependence and the limited use in time limit the use of the bubble detectors in compare with CR-39.

c).Applications

Examples can be given to show that the bubble detectors are certainly useful devices in the small world of neutron measurements [20,21,22,23,24]. The most common uses until now have been as self-reading pencil chambers and for low-level monitoring of the working environment. Their freedom from noise provides a reliable indication of the presence of neutrons. It can be implemented as an ideal alarm dosimeter without the worry of power loss, and in the future it will certainly grow towards a real personal dosimeter.

As personal dosimeter they have the already mentioned disadvantages over the CR-

39, so one needs improvements on the restricted range of dose, the sensitivity variation and the higher cost. Still broad spectra are difficult for conventional dosimeters while bubble detectors respond to all energies and their high sensitivity and γ -independence are unique. Since the introduction of these detectors their capabilities have improved markedly, and further substantial improvements can be expected. At the SCK/CEN a thorough study has started on the characteristics of the bubble detectors, for instance to determine the important temperature dependence.

References

- [1] D.A. Glaser, *Phys. Rev.* **87**, 665 (1952)
- [2] R.E. Apfel, *The Superheated Drop Detector*, *Nucl. Instr. Meth* **162**, 603-608 (1979)
- [3] R.E. Apfel, *Detector and Dosimeter for Neutrons and Other Radiations*, U.S. Patent 4,143,274 (1979)
- [4] M.J. Harper and M.E. Nelson, *Experimental Verification of a Superheated Liquid Droplet (Bubble) Neutron Detector Theoretical Model*, *Rad. Prot. Dos.* **47 (1/4)**, 535-542 (1993)
- [5] F. Seitz, *On the Theory of the Bubble Chamber*, *Phys. Fluids* **1**, 2-13 (1958)
- [6] R.E. Apfel, *Characterisation of New Passive Superheated Drop (Bubble) Dosimeters*, *Rad. Prot. Dos.* **44 (1/4)**, 343-346 (1992)
- [7] D.R. Sisk, K.L. Swinth and R.E. Apfel, *Neutron Detection Based on Superheated Materials*, *IEEE Trans. Nucl. Sc.* **37 (2)**, 902-906 (1990)
- [8] H. Ing and H.C. Birnboim, *Direct Reading detector/dosimeter for Neutrons and other High LET Radiation*, U.S. Patent 4,613,758 (1986)
- [9] H. Ing, *The Status of the Bubble Damage Polymer Detector*, *Nuclear Tracks* **12 (1-6)**, 49-54 (1986)
- [10] G. Riel, *Role of Neutron Bubble Dosimeters*, *Rad. Prot. Dos.* **47 (1/4)**, 543-545 (1993)
- [11] J.C. Liu and C.S. Sims, *Characterisation of the Harshaw Albedo TLD and the Bubble Detectors BD 100R and BDS-1500*, *Rad. Prot. Dos.* **32 (1)**, 21- 32 (1990)

- [12] Y.C. Lo and R.E. Apfel, *Prediction and Experimental Confirmation of the Response Function for Neutron Detection using Superheated Drops*, Phys.Rev.A **38 (10)**, 5260-5266 (1988)
- [13] C.K. Wang, *Neutron Response of a Polyethylene-Moderated Superheated Drop Detector*, Health Physics **62 (3)**, 215-222 (1992)
- [14] R.B. Schwartz and J.B. Hunt, *Measurement of the Energy Response of Superheated Drop Neutron Detectors*, Rad.Prot.Dos. **34 (1/4)**, 377-380 (1990)
- [15] C.A. Perks, R.T. Devine, K.G. Harrison, R.J. Goodenough, J.B. Hunt, T.L. Johnson, G.L. Reil and R.B. Schwartz, *Neutron Dosimetry Studies using the New Chalk River Nuclear Laboratories Bubble-Damage Detector*, Rad.Prot.Dos. **23 (1/4)** (1988)
- [16] N.E. Ipe, D.D. Busick and R.W. Pollock, *Factors Affecting the Response of the Detector BD-100 and a Comparison of its Response to CR-39*, Rad.Prot.Dos. **23 (1/4)**, 135-138 (1988)
- [17] G. Riel, N. Rao, H. Kerschner and M. Nelson, *Superheated Drop Bubble-Neutron Dosimeter Performance in Work Environment*, IEEE Trans.Nucl.Sc. **38 (2)**, 494-496 (1991)
- [18] Matullah, K. Kudo, T. Rashid, N. Takeda, Y. Xiaoyun and T.Yamamoto, *Comparative Studies of BD 100R Bubble and CR-39 based Neutron Detectors for Personnel Neutron Dosimetry*, Rad.Prot.Dos. **47 (1/4)**, 555-558 (1993)
- [19] W.G. Cross, *Superheated Drop and Bubble Detectors for Neutron Dosimetry*, Rad.Prot.Dos. **36 (1)**, 3-4 (1991)
- [20] W.F. Harvey and F. Hajnal, *Neutron Spectral Measurements at LANL*, Rad.Prot.Dos. **50 (1)**, 13-30 (1993)
- [21] M.E. Nelson and R. Gordon, *Comparison of Neutron Measurements at LINACS using Bubble Dosimeters to other Neutron Detectors*, Rad.Prot.Dos. **47 (1/4)**, 547-550 (1993)
- [22] N. Smirnova, N. Semaschko and Y. Martinuk, *Bubble Detectors in Fusion Dosimetry*, Rad.Prot.Dos. **44 (1/4)**, 347-349 (1992)
- [23] F. d'Errico and R.E. Apfel, *A New Method for Neutron Depth Dosimetry with*

the Superheated Drop Detector, Rad.Prot.Dos. **30 (2)**,101-106 (1990)

[24] R.E. Apfel, *Exposure to Neutron Radiation in Commercial Flights*, Rad.Prot.Dos. **47 (1/4)**, 551-554 (1993)

Samenvatting

Neutronendosimetrie is en blijft een probleem in de stralingsbescherming. De verhoogde kwaliteitsfactoren en de verlaging van de limieten voor het jaarlijks opgelopen dosis equivalent in de ICRP 60 zullen deze problemen nog vergroten. Er is dus duidelijk een behoefte zijn aan meer nauwkeurige, meer gevoelige en beter betrouwbare methoden om een neutronendosis te bepalen.

Neutronen detectie gebaseerd op oververhitte vloeistoffen, beter bekend als de bubble detector, is een relatief nieuwe methode met veelbelovende eigenschappen. In wat volgt zullen wij een overzicht geven van de belangrijkste kenmerken en kwaliteiten van deze bubble detector. We geven een overzicht van de commercieel verkrijgbare vormen van deze detectoren, vergelijken hun eigenschappen met andere dosimetrische methoden en geven de huidige en toekomstige toepassingsmogelijkheden.

Résumé

Dans la radioprotection, un intérêt croissant se développe pour la dosimétrie neutronique. L'augmentation des facteurs de qualité et la réduction des limites des équivalents de dose dans l'ICRP 60, pour les travailleurs du domaine nucléaire sont en effet des menaces bien présentes. A côté des difficultés déjà nombreuses associées à une dosimétrie neutronique performante, ceux-ci accentuent le besoin de méthodes plus fiables, plus précises et plus sensibles.

Une méthode relativement nouvelle qui présente les possibilités de résoudre beaucoup de problèmes existants et futurs consiste en la détection de neutrons basée sur des gouttes surchauffées. Ce papier résume les caractéristiques et qualités principales de ces détecteurs à bulles. Les différentes formes commercialement disponibles de ces détecteurs sont passées en revue, une comparaison est faite avec les autres méthodes dosimétriques et les applications futures et présentes sont données.

Microsystems for dosimetry and radiation protection in first applications for radon- and progeny monitoring

T. Streil, R. Klinke^{*}, G. Just, A. Poffijn^{} and G. Meesen^{**}**

SARAD GmbH, Cunnersdorfer Str. 12, 01705 Freital, Germany

Fraunhofer-Institute of Microelectronic Circuits and Systems
Grenzstr.28, D 01109 Dresden, Germany

^{**} Radon research group
c/o INW, University Gent, Proeftuinstraat, B-9000, Belgium

ABSTRACT

We report on the development of low cost alpha particle sensor systems for radon-and progeny monitoring and dosimetry ($E_{\alpha}=5.5...7.9$ MeV).

KEYWORDS

Radon- and radonprogeny monitoring, alphaspectroscopic microsystem, remedial action, equilibrium factor measurement,

INTRODUCTION

The radon measurement in soil gas, the radon risk mapping, the measurement of the radon gas and the progeny in houses and the quality control of radon mitigation action with cost effective methods is up to now a big problem. With the cost effective passive detection systems like " track etch detectors " a continuous measurement is not possible. The measurement of the equilibrium factor between

radon and radon progeny in the same device and continuous is also very difficult. A new direction in the development of the measuring technique is the use of the microsystem technic (Streil *et al.* 1994). It is known that commercial dRAM cells are sensitive to alpha particles, but the efficiency is at most 20% resulting in an unstable operating range ($U_{cc} < 4 V$). Furthermore it is known that pn-diodes and phototransistors are also very sensitive for alpha particles.

Our first development in the field of alpha radiation detections systems was developed on the experience in the field of high density dRAMs by improving the collecting efficiency for electron hole pairs generated in the substrate by the incidence of alpha particles. Because in this sensor system detector elements for alpha particles (1 million detector cells with an effective Sensor area of 36 mm²) are integrated with a readout electronics and a memory on a single silicon chip, it is a real microsystem. The sensor system was fabricated in a 1.0 μm n-well CMOS d-RAM-technology (Streil *et al.* 1991). Using the experience of these microsystem we developed an alpha particle spectrometric sensor array with special PMOS-Transistors in a floating n-well as sensor cells. 1024 Sensorcells, the pre-amplifiers, the analog memories, a fast 4 bit parallel A/-D converter, and the adresscoding system are integrated on a singel chip. Using two of this microsystems we have developed a radon-and radon progeny monitor system.

PRINCIPLE OF OPERATION

Alpha particles incident in a silicon substrate generate electron hole pairs along their track. The alpha particles lose an average energy of about 3.6 eV per generated electron hole pair at room temperature. The charge generated near or across a pn-junction provides a current in the electric field at the pn-junction. Using special PMOS-transistors in a floating n-well as sensor cells it is possible to create an alpha particle spectroscopic sensor array. These PMOS -transistor has the advantage of a self amplification. This

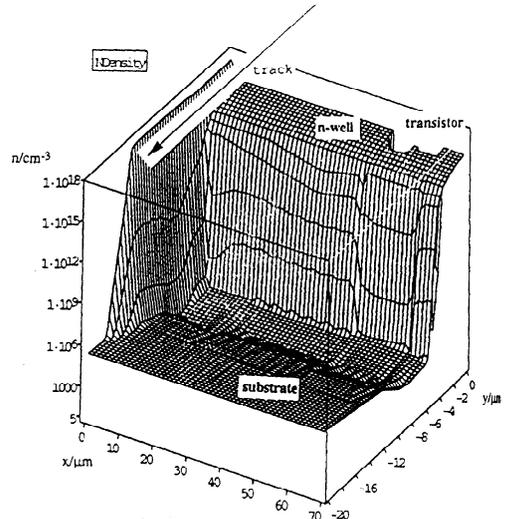


Fig 1. Electron density distribution 10⁻¹¹ s after particle incidence in a special PMOS transistor

result in a good signal to noise ratio for the alpha particle detection. We have calculated the charge collection by using the TOSCA code. Fig.1 shows the distribution of the electron density for a sensor cell consisting of a $100\ \mu\text{m} * 100\ \mu\text{m}$ special PMOS-transistor in a floating n-well which was hit by a 5,5 MeV alpha particle.

1024 sensor cells, the pre-amplifiers, the analog memories, a fast 4 bit parallel A/D converter, an analog comparator (energy counter) with a programmable threshold and the address coding system are integrated on a single chip. The chip area is $110\ \text{mm}^2$ (after redesign $60\ \text{mm}^2$) and the effective sensor area is $40\ \text{mm}^2$. These chip is fabricated in a standard $2.0\ \mu\text{m}$ n-well CMOS technology. By combination of this sensor chip with a single chip microcontroller and a display it is possible to realize a radiation monitoring system. To realize a radon/radon progeny equilibrium factor monitor system we use a measuring chamber with a electrostatic radon progeny collection on the sensor chip and a second sensor chip detect the progeny collected on the entrance filter of the system. The device works quasi continuous with a time resolution of 2 hours. The system pumped the air 6 min through the monitor and collect the progeny on the entrance filter and then we analyse the decay curve of the progeny for 2 h. The filtered air we analyse also in the radon measuring chamber.

RESULTS

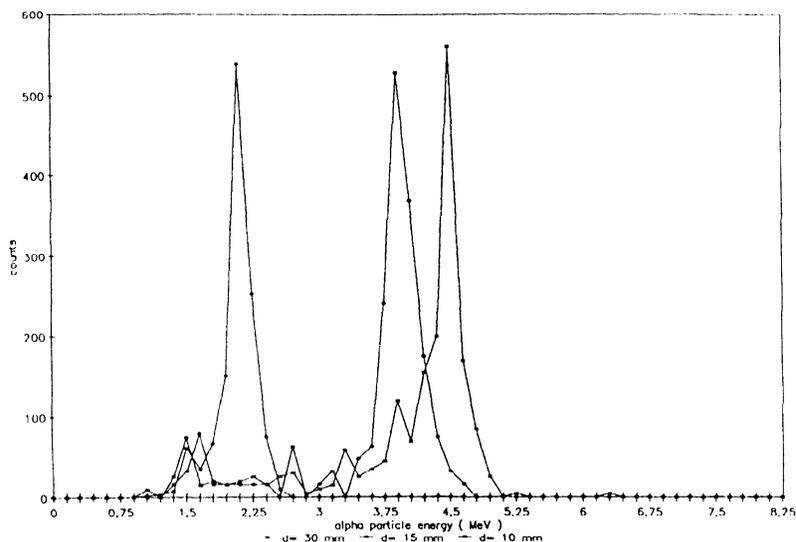


Fig. 2 Energy resolution of the alpha spectrometric sensor cell using a special PMOS transistor

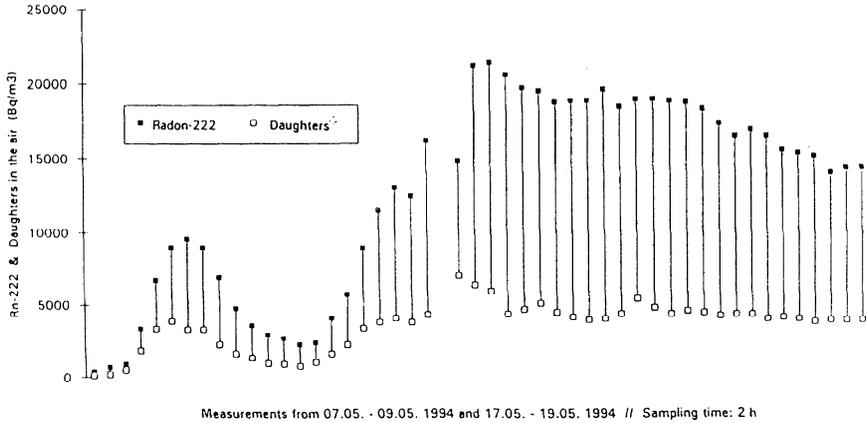


Fig. 3 radon - and daughter concentration in a old mine and the time variation of the equilibrium factor

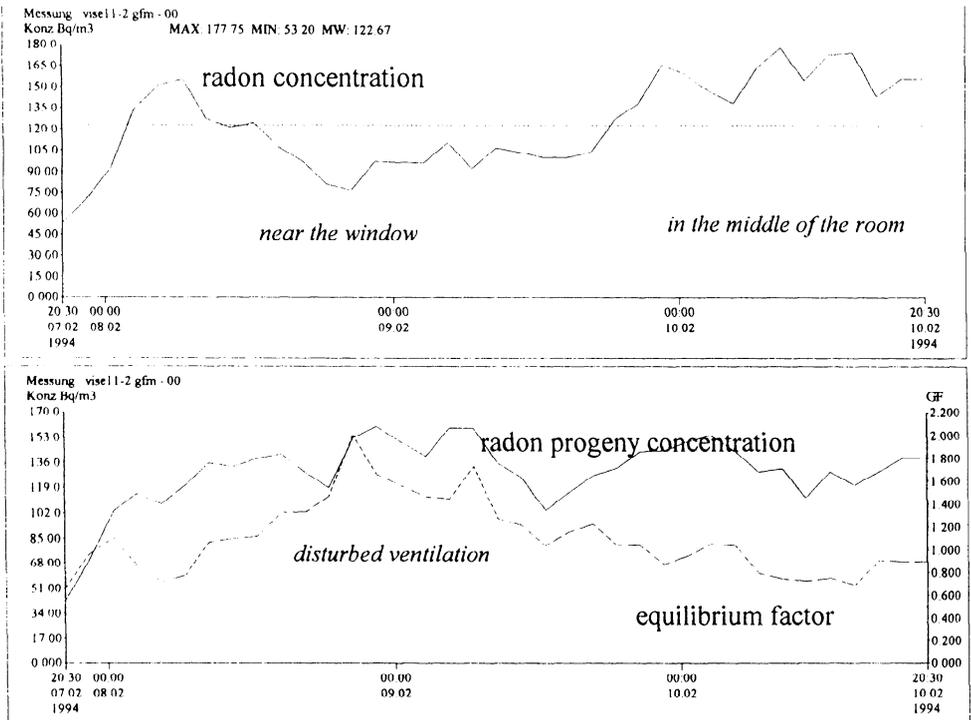


Fig. 4 radon- and radon progeny concentration in a ground floor room of a house in Cheratte (Belgium) and the time variation of the equilibrium factor

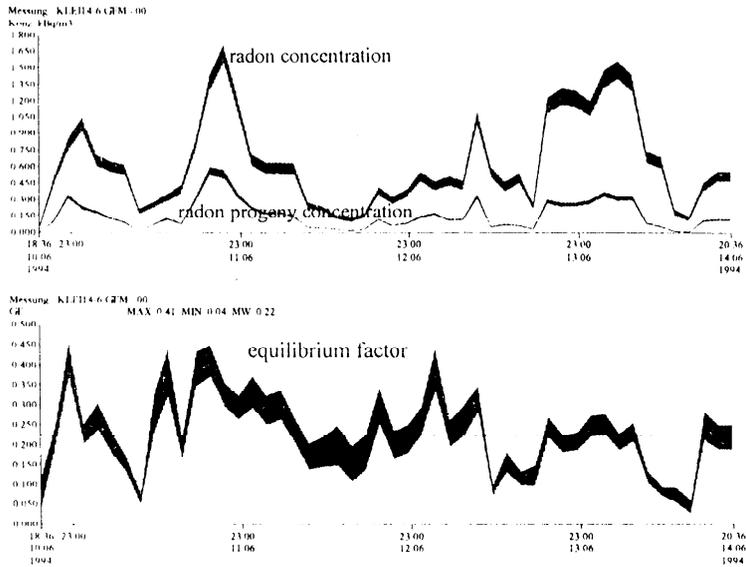


Fig. 5 radon- and radon progeny concentration in a ground floor room of a house in Kleinnaundorf (Germany) and the time variation of the equilibrium factor

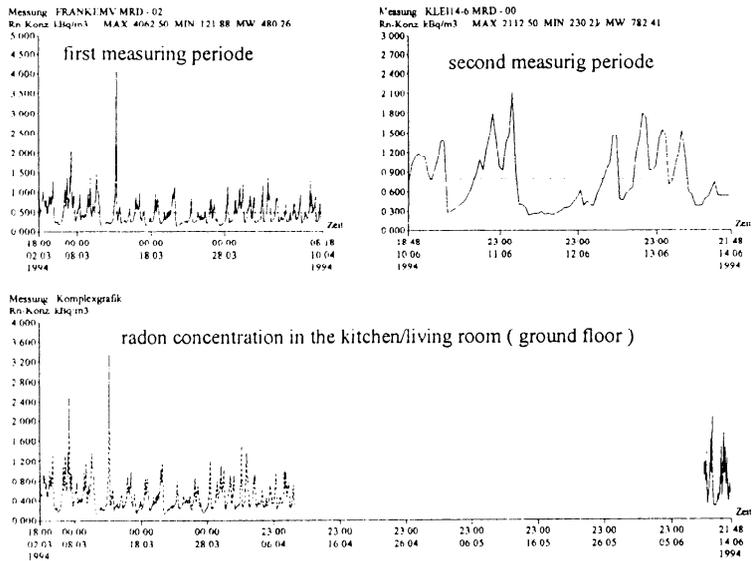


Fig. 6 long time measurement of the variation of the radon concentration in a house near Dresden

We have measured the energy resolution of the alpha spectrometric sensor cells including the preamplification, analog storage and the address coding system at room temperature. For this experiment an external 8 bit analog digital converter was used. The results for the measurement of the energy resolution are given in fig. 2. We used a collimated ^{241}Am - source giving alpha particles of 5.5 MeV and changed the alpha particle energy by varying the distance between source and sensor. The three peaks in the figure 2 correspond to three distances. The distance was varied in range of 10 to 30 mm. The energy resolution for 5 MeV alphaparticles is better than 300 KeV. The dead time is smaller 10 % up to 10^6 alpha particles per second and square centimeter.

Using this microsystem the SARAD EQF 3000 radon and progeny monitor was developed and tested.

Fig 3 shows the variation of the radon and progeny concentration in an old mining area near Zinnwald, Germany Eastern part of the Ore Mountains in two measuring periodes. The equilibrium factor change from 0.2 to 0.6 depending of the ventilaton relation in this mine.

The time variation of the equilibrium factor in living rooms is shown in fig. 4. We measured in a ground floor room in a house in Cheratte near a radon risk area of Belgium. The use of a oil vacuum pump in this room results in a high aerosol concentration. A (non) equilibrium factor up to 2 was measured. We found a disturbed ventillation in this room. The equilibrium factor was high near the window and normal in the middle of the room. The high aerosol concentration in this room results also in equilibrium factor greather than 0.5.

The german towns Dresden and Freital are also placed in a high radon risk area with radon concentration in buildings up to 100 kBq/m^3 . Fig. 5 shows the time variation of the equilibrium factor in a ground floor room in a house near Dresden. The aerosol concentration was in this house small. Therefore the attached component of the radon progeny concentration is also smaller and we measure a medium equilibrium factor of 0.22 . The equilibrium factor varied from 0.05 to 0.45 in this room. A continuouse long time measurement of the radon concentration in this house is shown in fig. 6. The radon concentration varied also verry strong. This house is located near a tectonic fault. Therefore the radon concentration in the soil and the house depends from the meteorological conditions.

An other old house in Lixhe (Belgium) was remediated by installation of a fan in a radon sump. The efficiency of this action shows Fig. 7. Switch off of the ventilation in the sump the radon concentration in the house increase fast. The measured soil

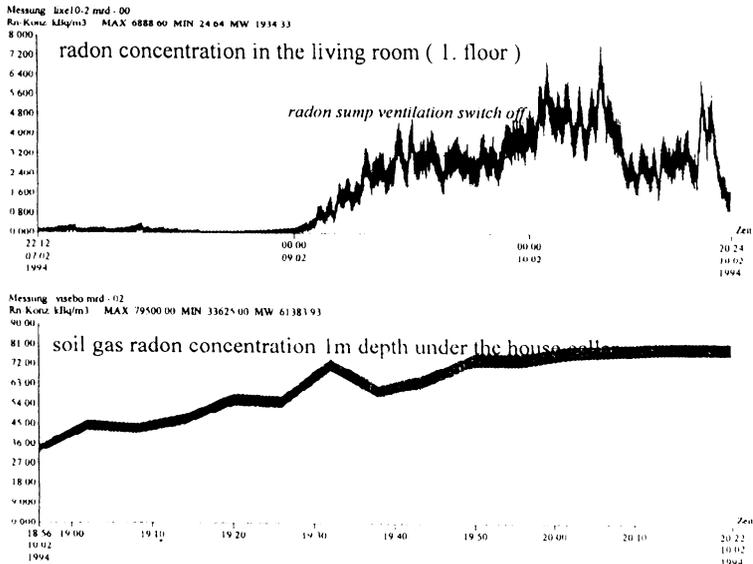


Fig. 7 demonstration of the efficiency of a radon sump in a house in Lixhe (Belgium)

gas radon concentration under the house cellar show that this house is located in a high radon risk area.

The systems are tested in several radiation fields like neutron-, proton-, alpha-, beta-, and gamma-radiation. The efficiency of the alpha radiation detection systems in radon-monitoring systems was proved in various applications like [2]:

- overview measurements, for classification of buildings and rooms
- quality control of remedial actions
- analysing radon concentration over long time intervals and a large number of measurements
- effective screening measurement in the high level ratio
- environmental monitoring of the air (specially near uranium mines) and the soil
- dosimetric and medical diagnostic in radon baths

REFERENCES

Streil, T., A. Erlebach, P. Hübler, A. Scade, W. Kluge and R. Jähne, A Megarad - a new alpha radiation detection system for environmental surveys, proc. 2nd Workshop on Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental and/or Earth Sciences, Trieste, Italy Nov./ Dec. 1991 , 554-559

Streil, T., R. Klinke, A. Erlebach, P. Hübler, W. Kluge, H. Kück and G. Zimmer, A New alpha radiation detection systems for environmental surveys , Sensors and Actuators A, 41-42 (1994) 85-87

Résumé

Nous donnons le développement des systèmes sensibles, à faible coût, pour le contrôle et la dosimétrie de particules alpha du radon et de ses produits de filiation ($E_{\alpha} = 5.5...7.9$ MeV)

Samenvatting

Wij bespreken de ontwikkeling van goedkope alpha detectors voor gebruik in meetsystemen voor radon en volgprodukten en voor dosimetrische toepassingen ($E_{\alpha} = 5.5...7.9$ MeV)

Quelques recherches en dosimétrie de radioprotection

D. Blanc

Professeur à l'Université Paul Sabatier (Toulouse -France)
Conseiller scientifique à l'IPSN(DPHD)

Le texte de cet exposé n'est pas disponible.

Le secrétariat de l'Association belge de Radioprotection possède toutefois une copie des transparents qui ont été présentés par Monsieur Blanc. Ils peuvent être consultés sur demande.

Recent Developments of personal Monitoring in Germany

D. Regulla

GSF-Institut für Strahlenschutz, Neuherberg , Germany

The text of this paper is not available.

Progress in Electronic Personal Dosimetry

P.H. Burgess

National Radiological Protection Board

The text of this paper is not available.

The Secretariate of the Association belge de Radioprotection is in possession of the speaking notes of the author. Copies of these can be sent on request.

Accidents radiologiques : les retours d'expériences

ZERBIB J.-C.

**Commissariat à l'Energie Atomique - Centre d'Etudes de Saclay
91191 - Gif sur Yvette - France**

Résumé

La grande majorité des bilans de situations accidentelles, pour lesquelles ont été observées des atteintes radiologiques graves, prend en compte des événements postérieurs à 1945. S'il n'existe qu'un seul registre mondial des accidents radiologiques et nucléaires (Oak Ridge), initié en 1975, plusieurs travaux d'auteurs ont été publiés depuis 1978.

Les critères d'enregistrement des accidents figurant dans ces différentes publications ne sont pas toujours semblables. Toutefois, les décès ainsi que les brûlures radiologiques graves accompagnées de sanctions chirurgicales sont pris en compte dans les divers bilans publiés.

Pour les périodes 1980-84 et 1985-89, le nombre de personnes impliquées dans des accidents mettant en jeu des sources scellées a augmenté très significativement par comparaison avec les périodes antérieures. Ceci est consécutif aux accidents de Juarez (Mexique) et de Goiânia (Brésil). De même, la prise en compte de l'accident nucléaire de Tchernobyl modifie de manière importante le bilan des décès et des atteintes sévères. Plusieurs travaux d'auteurs font l'objet d'une présentation.

S'agissant des accidents radiologiques impliquant des personnes du public, l'analyse des accidents publiés permet l'esquisse de scénarios "types" qui conduisent à des situations accidentelles graves, voire mortelles.

La récupération de matériaux conduit également, dans quelques cas, à des expositions chroniques plus ou moins importantes de personnes du public.

Ce risque mis récemment en évidence nécessite la mise en oeuvre de contrôles systématiques des matériaux destinés à des recyclages.

Depuis la découverte, en novembre 1895, du rayonnement X par le Dr. Roëntgen, des atteintes sévères de l'organisme, par des irradiations uniques ou répétées, ont jalonné l'histoire de l'utilisation de ces rayonnements.

1. Historique des situations accidentelles (1895 - 1945)

Les brûlures de la peau, allant parfois jusqu'à la **nécrose** de tissus profonds, étaient le fait de l'exposition des mains et des avant-bras à des générateurs électriques de rayonnement X.

En outre, des **cancers de la peau** étaient induits par l'irradiation répétée des extrémités. Le premier cas fut signalé, en 1902, à Hambourg, 7 ans après la découverte du rayonnement X. Il s'agissait d'un cancer professionnel: un homme de 33 ans, travaillant depuis 4 ans dans une fabrique de tubes à rayons X, testait sur sa main les appareils fabriqués.

Dans les années qui suivirent, plusieurs cancérisations survenues sur des radiodermites aiguës ou chroniques étaient signalées.

Lorsque le nombre d'atteintes sévères colligées était important, le taux moyen de dégénérescences malignes évalué variait entre 15 et 55% environ.

La découverte de Pierre et Marie Curie, le 6 juin 1898, d'un corps plus "actif" que l'uranium naturel, élément dont Henri Becquerel avait, deux mois auparavant, montré qu'il émettait un rayonnement pénétrant, devait également apporter, mais peut-être dans une moindre mesure, son contingent de brûlures radiologiques.

Les premières victimes de ces atteintes furent justement MM. Becquerel et Curie, qui décrivent d'ailleurs à l'Académie des Sciences en 1901 la brûlure accidentelle du premier par une source de radium 226 et l'exposition volontaire et douloureuse du second [BEC 01], [REI 79].

Les atteintes qui ont marqué, jusqu'en 1987, la découverte du rayonnement X, puis celle du **radium 226** furent nombreuses et sévères.

Leur recueil montre que les premières utilisations des rayonnements à des fins médicales, de recherches ou industrielles ont provoqué des atteintes professionnelles graves qui se traduisent, parfois plusieurs dizaines d'années après le début de l'exposition aux risques, par des cancers de la peau, mais également par des leucémies et des cancers de la thyroïde [EGG 93], [LAG 74], [LAC 69], [ZER 88], [ZER 93a].

Ces expositions professionnelles ont d'abord concerné, dans la première moitié du 20^e siècle, les réalisateurs de générateurs électriques de rayonnement, des médecins, des infirmiers et, tout particulièrement, des radiologues. Dans les

années cinquante, cette liste des professions à risque s'est étendue aux dentistes et aux vétérinaires.

La plupart des bilans, publiés principalement depuis la fin des années 1970, sont relatifs aux accidents radiologiques et nucléaires ¹. C'est sur l'analyse de ces bilans, qui couvrent des périodes de temps variables débutant généralement vers 1945, que se fonde le "retour d'expérience".

2. Les bilans de situations accidentelles (1945 - 1993)

Le seul **registre mondial** des accidents radiologiques et nucléaires, appelé "United States Radiation Accident registry" est établi à Oak Ridge (USA).

Les autres bilans publiés concernent des travaux d'auteurs comme, par exemple :

- le répertoire des accidents radiologiques du Dr. Rodrigues de Oliviera [ROD 87],
- les différents bilans dressés par MM. Delpla, Dousset et le Dr. Jammet [DEL 78], [DOU 84], [DOU 86], [JAM 84],
- le bilan détaillé des surexpositions accidentelles effectué par le Dr. Nenot [NEN 92b],
- les bilans des victimes d'accidents nucléaires ou radiologiques, traitées à l'Institut Curie de Paris qui est l'un des Centres Internationaux de Radiopathologie reconnus par l'OMS [JAM 84], [JAM 81], [GON 83].

2.1. Le registre américain

Aux USA, tous les accidents radiologiques et nucléaires, survenus depuis 1944 dans le monde entier et ayant fait l'objet d'une publication, sont renseignés dans un registre particulier établi, depuis 1975, sous la responsabilité de l'AEC par le "Radiation Emergency Assistance Center / Training Site" - REAC/TS - situé à Oak Ridge [FRY 79], [LUS 79], [SAG 80], [LUS 88].

Des critères dosimétriques d'enregistrement sont fixés pour que l'accident figure au registre:

- dose efficace $\geq 0,25$ sievert,
- dose équivalente délivrée à la peau ≥ 6 sieverts,
- dose équivalente délivrée aux autres tissus ou organes $\geq 0,75$ sievert.

Dans la première publication du registre, 98 accidents étaient recensés à la date de septembre 1979. Ces accidents nucléaires ou radiologiques avaient concerné 562 personnes parmi lesquelles 306 avaient atteint ou dépassé un ou plusieurs critères justifiant l'enregistrement. Parmi les 16 décès dénombrés, 5 étaient consécutifs à des accidents de criticité, 9 à des expositions externes de l'organisme entier et 2 à des contaminations internes au plutonium.

En 1988, la deuxième publication a montré l'augmentation importante des indicateurs, due aux cas dénombrés au cours des 9 années qui suivirent la première publication du Registre.

Tableau I : Bilans des accidents radiologiques et nucléaires - 1944/1988

Période considérée	1944 - 1979	1944 - 1988
Nombre d'accidents survenus dans le monde	98	296
Nombre de personnes impliquées	562	136 615
Nombre d'expositions supérieures aux critères	306	24 853
Nombre de décès	16	69
Sources:	[LUS 79] [SAG 80]	[LUS 88]

Les augmentations importantes observées entre 1979 et 1988 sont probablement liées à l'accident de Tchernobyl. L'augmentation du nombre de personnes impliquées semble correspondre à la population évacuée (135.000 selon les autorités soviétiques) des régions limitrophes du réacteur accidenté.

La figure 1 montre l'évolution du nombre **total** d'accidents survenus dans le monde entre 1945 et 1987, tel qu'il figure dans le registre d'Oak Ridge. Les accidents sont répartis en trois familles (criticité, radio-isotopes et appareils électriques générateurs de rayonnements ionisants) [LUS 88].

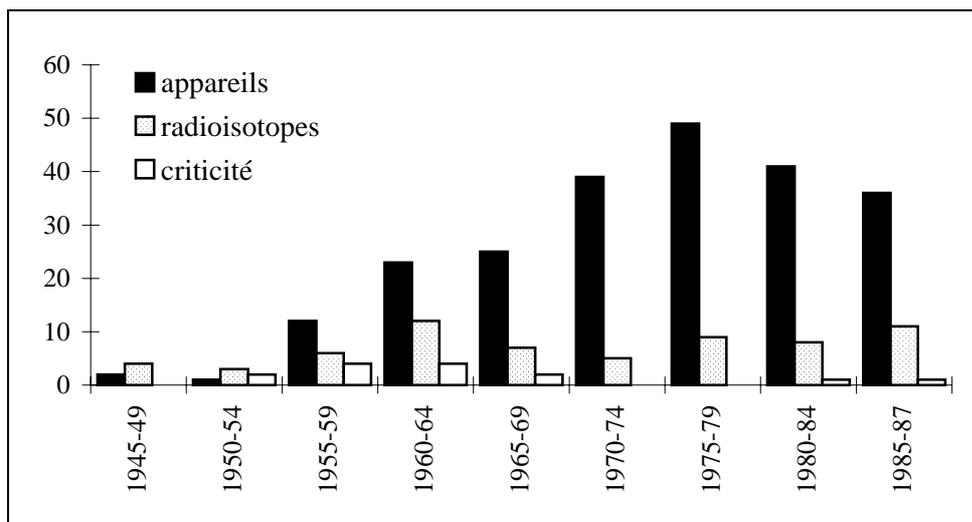


Figure n°1 - Nombre total d'accidents survenus dans le monde.

Source: LUSHBAUGH (1988) - Registre US REAC/TS

La figure 2 regroupe les accidents survenus dans le monde uniquement avec des **sources scellées**.

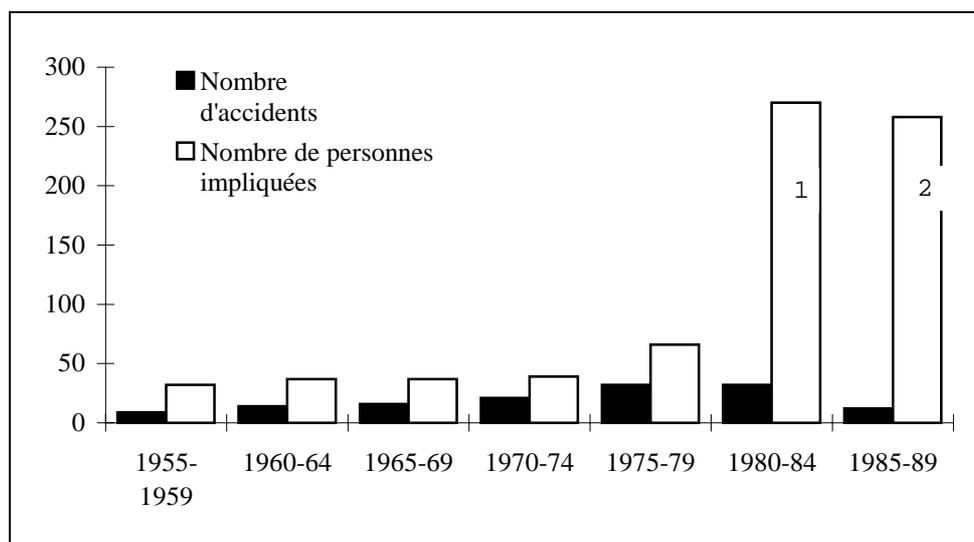


Figure n°2: Accidents dans le monde avec des sources scellées

(1) 270 personnes: accident JUAREZ (Mexique) source de cobalt 60

(2) 258 personnes dont 14 atteintes sévères et 4 décès: accident GOIANIA (Brésil) source de césium 137 -

Source: LUSHBAUGH (1988) - Registre US REAC/TS

Deux augmentations significatives portent sur le nombre de personnes impliquées, lors d'accidents survenus au cours des deux périodes quinquennales

1980-84 et 1985-89. Elles sont relatives à deux accidents qui présentent des points communs :

- celui de décembre 1983 survenu au Mexique dans la ville de **Juarez** où des ferrailleurs récupèrent un appareil de téléthérapie muni d'une source de cobalt 60 ; lors de son démontage, le confinement de la source est rompu. Aucun décès n'est déploré du fait de l'étalement des doses sur deux mois environ;
- celui de septembre 1987, survenu au Brésil dans la ville de **Goiânia** où 2 personnes démontent un appareil de téléthérapie muni d'une source de césium. Cette dernière est séparée de l'appareil abandonné depuis près de deux ans, dans des locaux en ruine. Son confinement est rompu. La source de césium provoquera des expositions externes et internes sévères. Cet accident très grave provoquera quatre décès.

Un résumé de ces deux événements est donné en Annexe I.

La publication la plus récente concernant des données partielles du Registre d'Oak Ridge a été faite par M. Cunningham (avril 1993). Elle porte sur le nombre d'accidents survenus dans le monde depuis 1978 [CUN 93].

Tableau II : Accidents radiologiques et nucléaires survenus dans le monde - 1978/1992

Type d'installation	Nombre d'atteintes sévères	Nombre de décès
Accélérateurs	34	15
Radio-isotopes	111	23
Criticité	1	1
Réacteur (Tchernobyl)	146	30
Total	292	69

2.2. Les bilans d'auteurs

Ces bilans prennent en compte, en général, des accidents considérés comme significatifs du fait de l'importance des doses délivrées ou des effets sanitaires observés: irradiations provoquant des brûlures radiologiques graves, accompagnées ou non de sanctions chirurgicales, ou de décès.

⇒ Parmi ces bilans on citera notamment l'important recueil du Dr. Rodrigues de Oliveira [ROD 87], qui intègre des données relatives à 299 références couvrant la période 1945-1985.

Les accidents importants retenus sont ceux qui ont provoqué des expositions globales ou localisées à des doses élevées telles que les victimes ont été contraintes à se soumettre à un traitement médical. Ces accidents sont classés suivant le type de sources ou d'appareils mis en jeu.

Nous retiendrons ici le bilan final qui constitue un point intermédiaire entre les deux publications du registre américain :

⇒ Le bilan des "surexpositions accidentelles" du Dr. Nénot J.C. [NEN 92b] décrit, commente et analyse les accidents radiologiques et nucléaires. Les grandes familles d'accidents font l'objet d'un examen didactique: réacteurs nucléaires, assemblages critiques, sources de gammagraphie industrielle, accélérateurs linéaires, appareils de téléthérapie.

Les syndromes de l'exposition aiguë globale ou localisée sont également présentés. Ces données regroupent le nombre d'événements et de victimes provoqués par des accidents de criticité, des expositions globales ou localisées et par des expositions internes.

Des bilans ont également été présentés par M. Dousset et le Dr. Jammet en 1984 [DOU 84], [JAM 84]. Les accidents retenus concernent également ceux où les sujets atteints ont présenté un état justifiant des soins attentifs.

2.3. Le bilan des accidents suivis par l'Institut Curie

Le Centre International de Radiopathologie situé à Paris a pratiquement vu le jour en 1956, par la création du Service Clinique de Radiopathologie à l'Institut du radium, devenu par la suite l'Institut Curie. Cet Institut a été reconnu officiellement en 1980 par l'OMS.

En septembre 1981, les Dr. Jammet et Gongora présentaient un bilan portant sur 199 personnes accueillies à l'Institut entre 1956 et 1980 [JAM 81]. Le deuxième bilan publié en 1983 a montré que sur les 209 personnes admises à l'Institut, 60 (28,7%) ont présenté des **radiolésions aiguës** [GON 83]. La proportion pour chaque source à l'origine des expositions est la suivante:

• radium 226	⇒	1 cas/2	(50 %)
• X - (faible énergie)	⇒	4 cas/23	(17,4 %)
• X - cristallographie	⇒	22 cas/60	(36,7 %)
• Iridium 192	⇒	18 cas/63	(28,6 %)
• Cobalt 60	⇒	10 cas/45	(22,2 %)
• Césium 137	⇒	1 cas/2	(50,0 %)
• Electrons	⇒	3 cas/5	(60,0 %)
• Neutrons	⇒	1 cas/1	(100,0 %)
• Réacteurs expérimentaux	⇒	0 cas/7	
• Protons	⇒	0 cas/1	

2.4. Le bilan des atteintes radiologiques en France.

Compte tenu du fait que les expositions aiguës localisées mettent quelques semaines ou quelques jours à s'exprimer cliniquement, le fait accidentel est souvent situé de manière imprécise dans le temps. Seule l'atteinte, lorsqu'elle s'est manifestée par des symptômes caractéristiques, témoigne de la réalité du fait accidentel. Pour éviter des contentieux administratifs et juridiques, le législateur français a classé les divers dommages provoqués par des expositions aiguës (ou chroniques) au tableau N°6 des "maladies professionnelles" du Régime Général de la Sécurité Sociale (environ 14,56 millions de salariés en 1991).

En utilisant les statistiques annuelles publiées par la Caisse Nationale d'Assurance Maladie des Travailleurs Salariés - CNAMTS - il est possible de constituer le tableau N°III qui donne l'évolution du nombre de certaines atteintes provoquées par les rayonnements ionisants et les taux moyens d'incidences annuelles.

La figure 3 illustre ces évolutions. De 1968 à 1991 (dernières statistiques publiées), on observe qu'il y a, en moyenne, 3,8 radiodermes aiguës reconnues par an en France, au titre des "Maladies Professionnelles".

Tableau III : Evolution du nombre de maladies professionnelles radioinduites reconnues au "régime général"

Année	Nombre total d'affections reconnues	Nombre de radiodermites	Affections hématologiques irradi. aiguës	Nombre de leucémies
1968	18	5	4	9
1969	27	6	12	7
1970	14	3	2	5
1971	18	1	6	11
1972	16	6	4	6
1973	16	6	2	3
1974	19	4	2	8
1975	12	5	2	4
1976	11	3	1	5
1977	15	7	0	5
1978	18	6	3	5
1979	18	7	0	7
1980	17	6	2	3
1981	19	3	2	10
1982	20	6	2	9
1983	19	4	0	9
1984	12	1	2	5
1985	16	2	1	7
1986	17	1	3	5
1987	20	1	2	9
1988	20	4	1	5
1989	21	1	0	9
1990	15	2	1	7
1991	22	2	4	7
Moyenne annuelle	17,5	3,8	2,4	6,7

Sources : Statistiques Nationales d'Accidents du travail"
Editeur : CNAMTS - 60, avenue du Maine - 75694 Paris Cedex

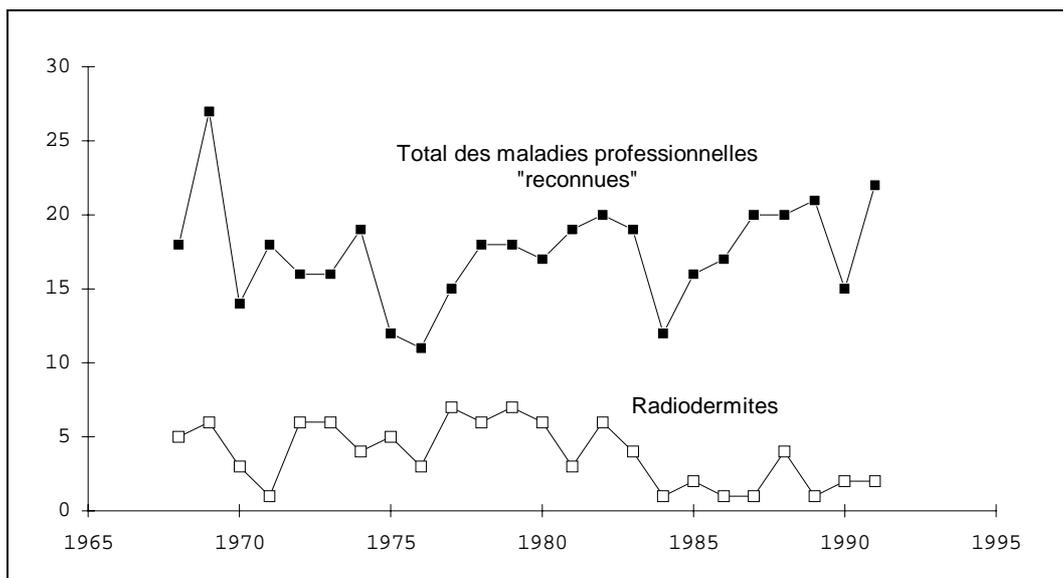


Figure n°3: Evolution du nombre de maladies professionnelles "radioinduites"

3. Les accidents impliquant des personnes du public

Exclusion faite des accidents survenus dans le monde médical, où l'on peut observer pour diverses causes accidentelles des "surdosages" qui se traduisent par des surexpositions localisées ou affectant l'organisme entier de patients en cours de traitement, il existe des atteintes radiologiques graves de personnes du public.

Ces accidents peuvent être regroupés suivant des **scénarios "types"**.

3.1. Les sources radioactives perdues

Les sources perdues qui occasionnent des accidents proviennent souvent de "gammagraphes" utilisés pour la radiographie des soudures. Le parc de ce type d'appareils a, en France, progressivement diminué au cours des 15 dernières années. De 1200 appareils en 1986 (dont 200 environ étaient journalièrement transportés sur route), le parc n'était plus constitué que de 850 gammagraphes en 1992, répartis chez 302 utilisateurs [CAN 86], [VID 93].

Les accidents déjà survenus dans le monde, principalement avec des sources d'appareils de gammagraphie, permettent de dégager deux types de cas:

1er scénario-type :

- Une source se désolidarise du câble qui permet la réintégration dans son conteneur;
- Elle est ramassée, mise dans une poche, puis parfois, dans une autre poche;

- La perte est signalée, la source retrouvée, l'exposition à mi-cuisse a duré 4 à 8 heures ;
- Les doses provoquent des nécroses de la peau, des tissus profonds, de l'artère fémorale ;
- L'évolution entraîne fréquemment une sanction chirurgicale.

Ce type d'accident est survenu au moins à deux reprises:

- le 3 mai 1968 à La Pate (Argentine), où un ouvrier soudeur qui avait mis dans ses poches de pantalon une source de césium 137 de 13 curies, a dû être amputé de la jambe gauche (6^e mois) puis de la droite (8^e mois) [DEL 78], [BEN 69].
- en 1979, à Montpellier, où un ouvrier a laissé 8 heures dans sa poche une source d'iridium 192 de 14 curies trouvée sur un chantier. Il a dû, après plusieurs interventions chirurgicales, être amputé de la jambe gauche du fait de l'atteinte sévère de l'artère fémorale (de l'ordre de 74 sieverts) [ROD 87], [DOU 84], [NEN 92b].

2^e scénario-type :

- Une source perdue est ramassée, puis emportée au domicile;
- Il y a alors une irradiation de longue durée d'un grand nombre de personnes. Les nausées et vomissements des victimes font que l'on soupçonne d'abord un empoisonnement. Plusieurs semaines peuvent se passer avant que l'on ne découvre la raison réelle des atteintes. Aussi, ce scénario entraîne souvent un nombre important de victimes et des atteintes mortelles:
 - A Mexico, le 21 mars 1962, un enfant de 10 ans rapporte un petit cylindre de métal. Sa mère le place dans le tiroir d'un buffet de cuisine. C'est une source de 5 curies de cobalt 60. L'exposition entraîne 4 décès, dont la mère qui est enceinte. Seul le père survit du fait de ses absences pour se rendre à son lieu de travail. [DEL 78], [CFD 80].
 - En Chine, en 1963, un enfant rapporte une source de cobalt 60 à la maison : deux personnes sur six décèdent. [NEN 92b], [YEG 79].

- A Sétif, en Algérie, au début de mai 1978, deux petits garçons jouent avec un petit cylindre de métal avant que la grand-mère ne l'emporte à la maison: c'est une source d'iridium 192 de 17 curies. Pendant 5 à 6 semaines, durant 6 à 8 heures par jour, 22 personnes seront exposées, 7 parmi elles à de fortes doses. La reconstitution a été conduite par l'IPSN/CEA et les personnes hospitalisées à l'Institut Curie. Seule la grand-mère décédera. Les deux enfants et quatre jeunes femmes exposées à des doses supralétales survivront du fait de l'étalement des doses sur plusieurs semaines. [CFD 80], [JAM 79a], [JAM 79b].
- Dans la banlieue de Casablanca (Maroc), à la fin mars 1984, une source de 28 curies d'iridium 192 qui s'est désolidarisée du câble d'un gammagraphe, est ramassée par un ouvrier qui la place sur la table de chevet de la salle familiale. En quelques semaines plusieurs décès se succèdent. Les recherches s'orientent vers un empoisonnement. Ce n'est que le 10 juin 1984 que les autorités marocaines soupçonnent une exposition aux rayonnements et demandent l'aide des autorités françaises. La source est récupérée par le SCPRI le 11 juin. Il y a eu, au moins, 8 décès parmi lesquels toute une famille a été décimée (père, mère enceinte et 4 enfants) [SCP 86].
- En décembre 1992, dans la province chinoise de Shanxi, un homme de 29 ans trouve une petite bille métallique dorée. Il la met dans la poche et l'apporte chez lui. C'est une source de cobalt 60. Atteint de vomissements, de toux, de troubles respiratoires, perdant ses cheveux, il est hospitalisé. Au bout de 2 semaines il décède. Son frère et son père, restés auprès de lui durant l'hospitalisation, décèdent la semaine suivante. La source a également exposé 90 personnes à l'hôpital. Parmi elles, cinq personnes ont reçu des doses importantes (Source: AIEA - février 1993)

3.2. La récupération de matériaux

Dans ce cas également, un scénario-type se dégage.

3^e scénario-type :

- Des ferrailleurs récupèrent directement ou indirectement des appareils renfermant des sources radioactives.
- La multiplicité des matériaux constituant la tête d'irradiation (fer, acier inoxydable, plomb) les conduit à démonter les mécanismes et à mettre la source à nu.

C'est la situation précédemment décrite, rencontrée à Juarez et à Goiânia (Annexe I).

Les graves conséquences sanitaires comme les difficultés d'assainissement rencontrées à Goiânia sont liées au fait qu'il s'agissait d'une source de césium 137 dont la résistance mécanique est médiocre, à l'inverse du cobalt 60 qui se présente généralement sous forme de petites billes métalliques.

Cependant, des scénarios tels que celui de Juarez (1983) qui conduisent à mêler accidentellement des sources radioactives, plus ou moins intenses, à des ferrailles recyclées, ne sont pas des événements isolés. La probabilité de survenance de tels accidents peut augmenter avec l'usage croissant des sources radioactives à usages industriels ou médical. C'est ainsi par exemple:

- qu'aux USA, un article paru en octobre 1993 dans une Revue Technique Spécialisée révèle 6 cas de contaminations survenues en deux ans dans 5 aciéries américaines, dues probablement à la fusion d'appareils renfermant une source radioactive [BEI 93].
- qu'à Taiwan, des constructions utilisant des barres d'acier précontraint contaminées par du cobalt 60 ont été découvertes en 1992 (Annexe 1) [SAT 93], [YUL 93].
- qu'en septembre 1993, on découvrait dans le port de Rotterdam la contamination de la cargaison d'un cargo sud-africain (16,2 t d'acier) faisant route vers le Royaume-Uni. Une enquête conduite en Afrique du Sud par le Conseil de la Sécurité Nucléaire - CNS - révélait alors que huit Compagnies exploitant une vingtaine de mines d'or et d'uranium vendaient depuis plusieurs années, du métal contaminé, à des niveaux plus de 100 fois supérieurs aux valeurs légales nationales, à des ferrailleurs (dépêche AFP du 29/09/93). Le CNS a fait fermer les deux entreprises qui avaient fourni le métal contaminé saisi sur le cargo.

Un effort important est donc à porter, tant sur la récupération systématique des sources radioactives devenues sans emploi, que sur le contrôle des métaux récupérés qui entrent dans une aciérie en vue de leur recyclage.

Un cas inhabituel de contamination de métal précieux s'est déroulé à New York dans les années cinquante. Il s'agissait d'or, ayant servi à contenir du radium 226, recyclé en bijouterie. En 1981, l'identification de 170 bijoux contaminés a permis de constater des radiodermes chez neuf personnes qui avaient porté ces objets en moyenne 17 ans. En 1989, sur trois nouvelles bagues découvertes, deux avaient provoqué des cancers cutanés aux doigts [PET 92].

4. Les accidents de criticité.

Avant l'accident de Tchernobyl, le bilan des accidents relatif à la période 1945-85, dressé par le Dr. Rodrigues de Oliviera [ROD 87], montre que les accidents de criticité, qui constituent la catégorie d'accidents la moins nombreuse, ont entraîné le tiers des décès recensés (9 sur 27) suite à tous les accidents, quelles que soient leurs causes. Ceci est dû au fait qu'en atteignant accidentellement la "masse critique" en milieu aqueux avec, par exemple, du plutonium, l'intense bouffée de particules "gamma" et "neutron" émise est telle qu'une dose mortelle est délivrée en quelques secondes à tout individu se trouvant à moins de 8 mètres environ du point "source".

5. Conclusions

Au lendemain de la découverte des rayonnements X, en novembre 1895, des brûlures radiologiques sévères accompagnées parfois de dégénérescences tardives furent observées dans le monde entier et décrites dans des revues médicales spécialisées.

Les atteintes ont concerné presque exclusivement des professionnels parmi lesquels se trouvaient les fabricants de tubes à rayonnements X, des médecins, des infirmiers, des chirurgiens, des radiologues. Une soixantaine d'années plus tard, les dentistes et les vétérinaires complètent cette liste des métiers à risque.

Le radium 226 découvert peu après les rayonnements X a apporté également, bien que dans une moindre mesure, son cortège d'atteintes liées à des expositions localisées ou générales (surtout par contamination interne).

Les bilans des situations accidentelles liées à l'utilisation de sources radioactives, d'appareils électriques générateurs de rayonnement ionisant ou d'assemblages "critiques" ne prennent généralement en compte que les situations décrites après 1945.

Hormis le bilan mondial des accidents radiologiques et nucléaires effectué aux Etats-Unis dans le Centre d'Oak Ridge, la plupart des informations regroupées et structurées sont relatives à des travaux d'auteurs. Il serait très utile que des Organismes publics se saisissent de ces travaux afin de pérenniser la fonction, de faire vivre ces bilans, d'améliorer la prévention fondée sur le "retour d'expérience".

Les différents bilans présentés montrent, depuis 1979, une augmentation générale du nombre d'accidents recensés, des victimes impliquées, ainsi que des décès observés dans le monde industriel, médical et de la recherche. Ils résultent probablement d'une utilisation des sources de rayonnements qui s'est généralisée notamment dans le monde industriel et médical. Ces augmentations du nombre d'accidents et de victimes déclarés pourraient être également induites en partie par une publication plus généralisée des situations accidentelles, qui surviennent dans le monde.

Les accidents les plus graves, pour lesquels des scénarios types peuvent être dégagés, arrivent lorsqu'une source radioactive est égarée ou que des ferrailleurs tentent de récupérer les matériaux nobles qui entourent la source d'un irradiateur abandonné par un utilisateur négligent.

Ces accidents graves, dont la plupart auraient été facilement évités, se produisent encore. Ils peuvent survenir dans tous les pays, quel que soit leur degré d'industrialisation.

Un plus grand respect de la Réglementation existante, portant sur les déclarations d'achat, de cession ou de vente, la formation et l'information des personnels intervenants, la mise en œuvre des contrôles des sources et appareils, et tout particulièrement la mise hors service des sources radioactives, permettraient de réduire significativement le nombre et la gravité des accidents.

Par ailleurs, le contrôle de la radioactivité des matériaux qui arrivent chez les ferrailleurs et de ceux qui sont dirigés dans les fonderies de métaux de récupération, constituerait un moyen de lutte efficace contre ces types d'accidents.

Annexe

<p style="text-align: center;">LES ACCIDENTS RADIOLOGIQUES DE JUAREZ (Mexique) ET DE GOIANIA (Brésil)</p>
--

1. JUAREZ

Vers le 6 décembre 1983, au Mexique, dans la ville de Juarez (1 million d'habitants environ), une source de cobalt 60 de 16,65 TBq (450 Ci) équipant une source de téléthérapie est accidentellement endommagée, au moyen d'un tournevis, par des ferrailleurs qui ignoraient le caractère radioactif de ce matériau.

La source, constituée d'environ 6 000 petites pastilles de cobalt 60 (d'environ 75 mCi chacune), va égrener son contenu dans la camionnette qui sert à son transport (60 Ci), sur les routes et chemins parcourus (6 Ci), dans l'enclos du ferrailleur (148 Ci).

Les faits ne furent connus, par hasard, que le 16 janvier 1984, lorsqu'un camion chargé de "fer à béton" (contaminé dans la masse par le cobalt 60) franchit l'entrée, munie d'une balise de détection, du Centre Nucléaire Militaire de Los Alamos.

Les fonderies où la ferraille avait été apportée ont produit environ 500 tonnes de "fer à béton" contaminé à des degrés divers.

Une recherche (au moyen d'un hélicoptère muni de détecteurs à cristal d'iodure de sodium) portant sur 17 Etats du Mexique et aux USA, a permis le contrôle de 17 000 maisons et bâtiments¹. Les niveaux d'exposition trouvés dans 814 d'entre eux (65 Ci) nécessitèrent des destructions partielles ou totales.

Sur le plan sanitaire, on estime à environ 4 000, le nombre de personnes exposées:

- 3 200 personnes ont reçu des doses efficaces inférieures à 5 millisieverts,

¹ A cet effet, 679 km² ont été quadrillés par des mesures effectuées à 90m de hauteur suivant des lignes de vol espacées de 180m, ce qui correspondait à une limite de détection comprise entre 1,5 et 5 millicuries.

- 720 des doses comprises entre 5 et 250 millisieverts,
- 73 des doses comprises entre 0,25 et 3 sieverts,
- 5 personnes exposées entre 3 et 7 sieverts.

La dosimétrie biologique conduite sur 300 individus a permis d'évaluer les doses reçues les plus élevées (mesure du taux d'aberrations chromosomiques).

Aucun décès n'est déploré du fait de l'étalement des doses sur deux mois environ, bien que l'on ait atteint, voire même franchi, le niveau de dose létale.

Sources : [NEN 92b], [BUR 88], [MOL 89], [VAL 88].

2. GOIANIA

Au Brésil, vers la fin de l'année 1985, une clinique privée de radiothérapie, primitivement installée dans l'un des quartiers les plus pauvres de la ville de Goiânia (environ 1 million d'habitants), emménage dans de nouveaux locaux. Les responsables de la clinique transportent l'appareil muni d'une source de cobalt 60 et laissent sur place un appareil de téléthérapie équipé d'une source de césium 137. Les locaux sont partiellement détruits, ainsi que certains immeubles voisins, et laissés à l'abandon. Les salles de thérapie, compte tenu de leurs murs de béton, ne sont pas détruites mais tombent en ruine et semblent même avoir servi de refuge à des vagabonds.

Près de deux ans après, le 13 septembre 1987, deux personnes se rendent sur les lieux abandonnés et tentent, au moyen d'outils rudimentaires, de démonter l'appareil afin d'en revendre certaines parties à un ferrailleur. Elles ignorent tout du risque radiologique qu'elles encourent.

Après avoir retiré de la tête d'irradiation de l'appareil, le "barillet" en acier inoxydable qui renferme la source, elles l'emportent dans une brouette à 500 mètres de là. L'activité de la source est de 50,9 TBq (1375 Ci). Elle délivre, à un mètre, un débit de dose de 4,56 grays par heure.

Les deux intervenants sont pris de vomissements qu'ils attribuent à ce qu'ils ont mangé. Le lendemain, l'un d'eux a des diarrhées, des vertiges et un oedème à la main. Un médecin consulté attribue ces symptômes à des manifestations allergiques. La deuxième personne tente, le 18 septembre 1987,

d'extraire la source du barillet et perce, avec un tournevis, l'enveloppe de la source.

Les fragments du barillet sont vendus à un ferrailleur qui observe le soir une lueur bleue (due vraisemblablement à "l'effet Cherenkov") qui émane de la source. Il emporte alors la source chez lui et en distribue de petits fragments de la taille de grains de riz à des amis. Plusieurs d'entre eux vont s'enduire la peau de cette substance scintillante..

Dans les jours qui suivent, plusieurs personnes présentent des troubles intestinaux dus à leur exposition aux rayonnements.

Convaincue que ses malaises sont dus à la poudre mystérieuse, la femme du ferrailleur, aidée d'un employé, apportera la source au docteur de la "Vigilencia sanitaria". Ces deux personnes sont dirigées par le docteur vers un hôpital pour maladies tropicales où se trouvent déjà d'autres personnes contaminées.

Les soupçons d'une irradiation commencent à naître. Un docteur contacte un confrère du Département de l'Environnement, lequel consulte le lendemain un ami physicien médical de passage à Goiânia. Muni d'un scintillomètre, équipé d'une sonde gamma, utilisé pour la recherche des gisements d'uranium, ce physicien découvre, dans l'après-midi du 28 septembre 1987, des zones contaminées importantes.

Le physicien arrive, non sans mal, à convaincre d'une part le ferrailleur, sa famille et ses voisins de quitter les lieux, d'autre part, les autorités sanitaires très sceptiques, à intervenir rapidement.

Par sa force de conviction et son courage, ce physicien bénévole a permis, grâce aux évacuations qu'il a assurées de son propre chef, et à la mise en oeuvre d'une série d'actions de sauvegarde qu'il a conduites en étant relayé par les Autorités, à réduire l'impact sanitaire de ce grave accident.

La femme du ferrailleur (38 ans) et sa nièce âgée de 6 ans (qui a manipulé et ingéré de la poudre) décéderont le 23 octobre 1987. Les 27 et 28 octobre 1987, deux employés du ferrailleur, âgés de 22 et 18 ans, décédèrent à leur tour des suites d'atteintes multiples sévères (contaminations internes, irradiations externes globales et localisées ayant entraîné des nécroses).

Du 30 septembre au 22 décembre 1987, environ 112 800 personnes ont été contrôlées, parmi lesquelles 249 avaient une contamination interne **ou** externe. Pour 129 d'entre elles, la contamination était à la fois interne et externe.

Au total, 49 personnes ont été hospitalisées. Parmi elles, 10 étaient dans un état critique qui a entraîné les quatre décès et l'amputation d'un bras.

Sources : [NEN 92b], [VAL 88], [AIE 89].

3. T'AI-PEI

A la mi-août 1992, un journaliste du "Liberty Times" de Taiwan reçoit une lettre anonyme selon laquelle un building de la ville de T'ai-Pei, capitale de Taiwan (2,5 millions d'habitants), comporte des structures métalliques contaminées. Il publie alors un article accompagné d'une photo de la route de Long Chiang.

Les locataires d'un immeuble figurant sur la photo saisissent alors la Commission à l'Energie Atomique (AEC) taiwanaise. L'AEC déclare qu'il ne s'agit que d'une rumeur et invite les résidents à faire appel à un organisme privé s'ils souhaitent vraiment poursuivre leurs investigations. Le journaliste du "Liberty Times" se rend alors sur les lieux (21/08/92) muni d'un détecteur. Il détecte alors, dans les halls et ascenseurs d'un bâtiment abritant des bureaux et appartements, des niveaux d'activité aisément mesurables. L'AEC évaluera que 34 appartements sur 70 entraînent, en 1992, une exposition moyenne égale ou supérieure à 15 millisieverts par an (maximum atteint avec 70 mSv/an). Comme la construction a été réalisée 9 ans auparavant, des doses moyennes annuelles plus importantes ont été délivrées par la contamination au cobalt 60. Le calcul montre que la dose délivrée à un locataire résidant depuis 1983 dans l'immeuble atteint 240 mSv dans l'hypothèse d'une dose de 15 mSv/a pour la 9^e année.

L'AEC a distribué plus de 5000 détecteurs au fluorure de lithium afin d'évaluer le nombre de bâtiments construits en 1983 avec des parties métalliques contaminées. Le dépouillement des détecteurs a montré que 50 bâtiments étaient dans ce cas. La liste de 10 d'entre eux a été rendue publique.

Sources: [SAT 93], [YUL 93].

BIBLIOGRAPHIE

[AIE 89] *"L'accident radiologique de Goiânia"* - Rapport AIEA - Vienne - (1989).

[BEC 01] Becquerel H. et Curie P. - Compte rendu des Séances de l'Académie des Sciences - **132**, pp. 1289-1291 (1901)

[BEI 93] Beirne M. *"Chaptal melt "hots" on in scrap"* - American Metal Market - October 19, (1993)

[BEN 69] Beninson D., Placer A., Vanderelst - in "Handling of radiation accidents" - AIEA, Vienne, (mai 1969)

[BUR 88] Burson Z., Lushbaugh C.C. "Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 20-22, 1988 Edit : Elsevier pp. 89-107 - (1990) -

[CAN 86] Candiotti J. Radioprotection, **21**, N°3, pp 203-211, (1986).

[CFD 80] Syndicat CFDT de l'Energie Atomique *"Le dossier Electronucléaire"* Ed. Le Seuil, pp.(125-129 et 302-309).

[CUN 93] Cunningham R.E., Mc Kenney 4e Séminaire scientifique européen sur "l'Optimisation de la protection radiologique" 20-22 avril 1993 - Luxembourg.

[DEL 78] Delpla M., Fourgous J.M. *"Accidents et incidents nucléaires"*. Edit.: EDF, 3, rue de Messine, 75008 Paris - Janvier 1978.

[DOU 84] Dousset M., Jammet H. Symposium sur les "Irradiations accidentelles et thérapeutiques" Juin 1984 à Créteil - Edité par Galle P., Masse R., Nenot J.C.

[DOU 86] Dousset M., Jammet H. Séminaire Luxembourg - 19-21 février 1986. Rapport EUR 11 370 FR édité par la Commission de la Communauté Européenne.

[EGG 93] Eggermont G.X. - Annales de l'Association belge de Radioprotection - **18**, n°3, pp. 171-197, (1993)

[FRY 79] Fry S.A. Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 18-20, 1979, Oak Ridge - USA Edited by Elsevier North Holland, New York, pp(3-15) - 1980.

[GON 83] Gongora R., Jammet H. Radioprotection, **18**, N°3, pp(139-154), 1983.

[JAM 79a] Jammet H. ". Bulletin Académie Nationale de Médecine, **163**, N°2, pp(1441-1460).

[JAM 79b] Jammet H., Gongora R., Jockey P., Zucker J.M. International Conference of "Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 18-20, 1979, Oak Ridge - USA Edited by Elsevier North Holland, New York, pp(129-145) - 1980.

[JAM 81] Jammet H. Et Gongora R. 3ème congrès de l'Association Italienne de Radioprotection Médicale - Saint Vincent (Italie) - 13/15 septembre 1981 - Ed. Ernesto Strambi (Italie).

[JAM 84] Jammet H., Dousset M. Radioprotection, **19** , N°4, pp(269-274), 1984.

[LAC 69] Lacassagne A. Radioprotection, **3** , n° 4, pp.(305-310) - 1969.

[LAG 74] Lagrot F. "*Radiodermites des mains*" DOIN Editeur, Paris 1974 (231 pages).

[LUS 79] Lusbaugh C.C., Fry S.A., Hubner K.F., Ricks R.C. "Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 18-20, 1979, Oak Ridge - USA Edited by Elsevier North Holland, New York, pp(3-15) - 1980.

[LUS 88] Lusbaugh C.C., Ricks R.C, Fry S.A. Radiation protection in Nuclear Energy. **2/3**, pp(401-409) AIEA Conference, April 1988.

[MOL 89] Molina G. International Symposium on "Recovery operations in the event of a nuclear accident or radiological emergency". AIEA - Vienne - 6-10 November 1989.

[NEN 92b] Nenot J.C. "*Les surexpositions accidentelles*" Rapport DPHD/93-04, 63 pages, Novembre 1992 Editeur : CEA-IPSN - Fontenay aux Roses

[PET 92] Petterson B.G. AIEA , **3**, pp. 19-23, (1992)

[REI 79] Reid Robert "*Marie Curie derrière la légende*" Editions du Seuil - Collection "Points Sciences" - 1979.

[ROD 87]Rodrigues De Oliviera. A. Radioprotection, **22**, n° 2, pp(89-135), 1987.

[SAG 80] Sagan L.A. and Fry S.A. Nuclear Safety, **21**, N°5, pp(562-569), September-October 1980.

[SAT 93] Sato N. "*Radioactive contaminated buildings in Taiwan*" - Nuke Info Tokyo, N°36,(July/August 1993)

[SCP 86] SCPRI Rapport d'activité du SCPRI - 1984 pp(73-76) - 1986.

[VAL 88]Valverde N.J., Cordeiro J.M., Oliviera A.R., Brandao-Mello "Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 20-22, 1988. Edit: Elsevier pp.89-107 - (1990)

[VID 93] Vidal H. Séminaire SFRP sur la "Sécurité des sources radioactives scellées et des générateurs électriques de rayonnements" - Saclay (9 et 10 juin 1993)

[YEG 79]Ye Gen-Yao, Liu Yong, Tien Nue, Chiang Ben-Yun, Chien Feng-Wei, Xiae Chien-Ling "Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 18-20, 1979, Oak Ridge - USA Edited by Elsevier North Holland, New York, pp(81-89) - 1980.

[YUL 93]Yu-Ling W. "*Residents: Unprecedented radiation exposure attracts international attention*" in "Nuclear Report from Taiwan", **1**, N°5, 4-6, (September - October 1993)

[ZER 88] Zerbib J.C. - Colloque "Nucléaire - Santé - Sécurité" - Montauban (janvier 1988)

[ZER 93a] Zerbib J.C. - Séminaire SFRP sur la "Sécurité des sources radioactives scellées et des générateurs électriques de rayonnements" - Saclay (9 et 10 juin 1993)

Abstract

The majority of accidents, causing severe radiation detriment, occurred after 1945. One global nuclear accident registry exists, created in Oak Ridge in 1975. The numerous articles on this subject, published since 1978, are using different criteria for accident registration. All data-sets however are clearly specifying mortality and severe radiological skin burden, accompanied by surgery.

In the periods' 80-84 and 85-89, the number of individuals involved in accidents with sealed sources has increased considerably, compared to earlier periods. This phenomenon is related to the accidents in Juarez (Mexico) and Goiânia (Brazil). The Tsjernobyl accident has also seriously modified the mortality and severe health detriment due to ionising radiation as discussed in numerous publications.

The analysis of radiological accidents with public involvement is allowing to determine scenarios that can lead to severe, even mortal consequences.

The recycling of materials has illustrated a particular risk with in some cases considerable exposures of members of the public. This shows the necessity for a systematic control of materials directed to recycling.

Samenvatting

De meerderheid van de ongevalsanalyses die zware bestralingsletsels als gevolg hadden, betreft gebeurtenissen van na 1945.

Sinds 1978 zijn hierover diverse publicaties verschenen maar er bestaat slechts één mondiale registratie van nucleaire ongevallen, gestart in 1975 in Oak Ridge.

De criteria voor ongevalsregistratie verschillen vaak bij de diverse auteurs. In de diverse gepubliceerde balansen zijn overlijdens en zware radiologische brandwonden, die chirurgische ingrepen vereisen, wel duidelijk weergegeven.

Voor de periode 80-84 en 85-89 is het aantal personen betrokken bij ongevallen met ingekapselde bronnen zeer significant toegenomen in vergelijking met vorige perioden. Dit staat in verband met de ongevallen van Juarez (Mexico) en Goiânia (Brazilië). Het ongeval in Tsjernobyl heeft eveneens het aantal sterfgevallen en zware gezondheidsgevolgen grondig gewijzigd.

Voor radiologische ongevallen waarbij de bevolking betrokken is, laat de ongevalsanalyse toe om type-scenario's te bepalen die hebben geleid tot zware, soms dodelijke gevolgen.

De recyclage van materialen heeft in enkele gevallen tot belangrijke blootstelling geleid van individuen uit de bevolking.

De recent aangetoonde risico's ervan maken duidelijk dat systematische controle nodig is van de materialen bestemd voor de recycling.

Accidents sur irradiateurs: le retour d'expériences

ZERBIB J.-C.

Commissariat à l'Energie Atomique - Centre d'Etudes de Saclay
91191 - Gif sur Yvette - France

Résumé

Les deux types d'irradiateurs industriels, dont l'usage s'est développé au cours des vingt dernières années, sont décrits et les évaluations du parc mondial de ces deux familles d'appareils sont rapportées. Les circonstances des accidents les plus graves, survenus tant auprès des accélérateurs d'électrons que des irradiateurs munis de sources scellées de cobalt 60, sont décrites ainsi que les atteintes sanitaires des victimes. La dynamique d'apparition des lésions et leur suivi médical sont également présentés.

Certains accidents graves concernent des travailleurs affectés depuis peu auprès de l'accélérateur. La violation des circuits de sécurité est souvent le fait d'une méconnaissance profonde des risques potentiels graves. Cependant, des accidents mortels peuvent également concerner des opérateurs employés depuis plusieurs années auprès de l'irradiateur.

Une analyse des diverses situations accidentelles graves est présentée afin de dégager les divers éléments initiateurs d'accidents.

Ces derniers consistent principalement en des matériaux modifiés par l'action des rayonnements (durcissement des huiles et graisses, fragilisation de plastiques, colles, bois, cartons, etc.), ou en des transgressions rendues possibles des dispositifs de sécurité.

La connaissance de ces diverses situations accidentelles, leur analyse, la mise en oeuvre de correctifs et l'information des opérateurs sur ces "retours d'expérience" constituent un moyen efficace de prévention radiologique contre les accidents graves d'irradiation.

1. Les types d'irradiateurs industriels.

Les irradiateurs à usage industriel sont de deux types: accélérateurs d'électrons ou irradiateurs au cobalt 60.

Les **accélérateurs d'électrons** se caractérisent par l'énergie des électrons (E en MeV), la puissance du faisceau (kW) et la largeur explorée par le faisceau au moyen du cornet à balayage (scanner). La pénétration dans une matière donnée sera d'autant plus importante que l'énergie des électrons est élevée. On distingue ainsi trois familles principales d'accélérateurs:

- "basse énergie" E inférieur à 1 MeV
- "moyenne énergie" E compris entre 1 et 5 MeV
- "haute énergie" E compris entre 5 et 10 MeV

Les matières à irradier sont placées dans un convoyeur à rouleaux, à chaînes ou à balancelles.

La cellule d'irradiation possède des murs épais en béton et une géométrie (dite "en chicane") permettant de réduire les débits de dose, en tout point accessible de l'installation, aux niveaux exigés par l'esprit et la lettre de la réglementation en radioprotection.

Les évaluations du "parc mondial des accélérateurs" effectuées en 1992 estiment à **300** les installations consacrées à la stérilisation d'objets médicaux et à la radiochimie. A ceci s'ajoutent environ **300** autres accélérateurs dédiés au traitement du plastique [CPE 92]. Les figures 1 et 2 donnent l'évolution des acquisitions et du parc de cette dernière catégorie d'accélérateurs entre 1971 et 1989.

Il y a, en France, 10 accélérateurs à usage industriel ou de recherche appliquée, dont 5 appartiennent à la catégorie des "hautes énergies".

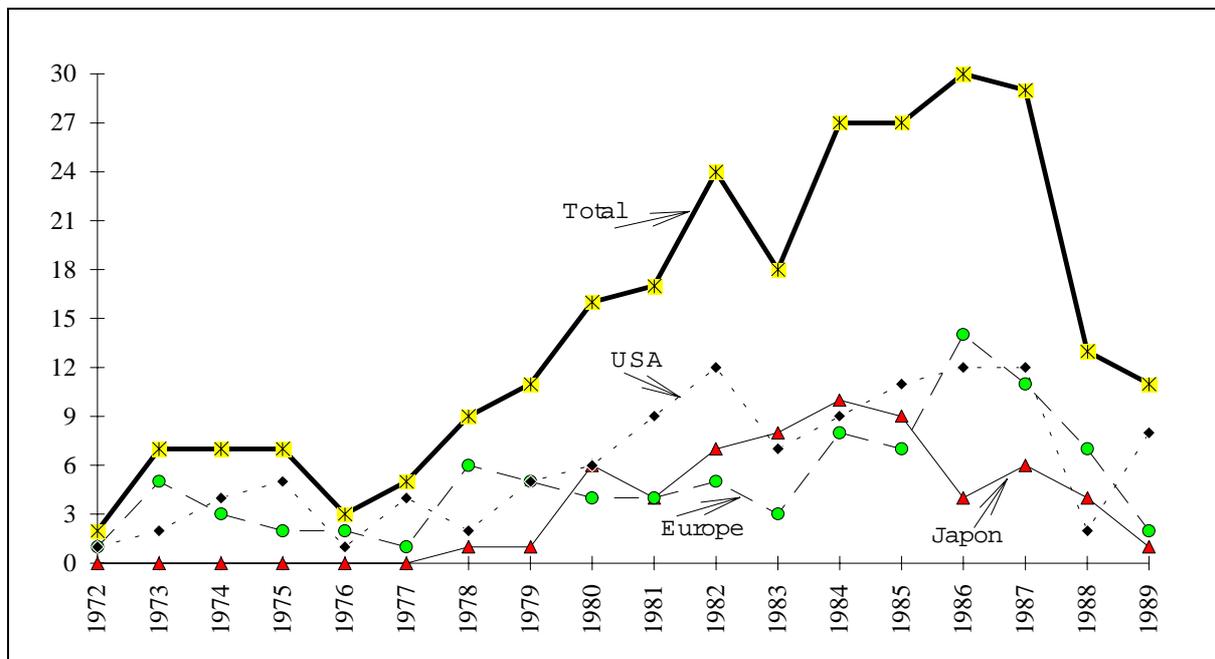


Figure n°1 - Evolution du nombre d'accélérateurs installés annuellement pour le traitement des matières plastiques - Source: [CPE 92]

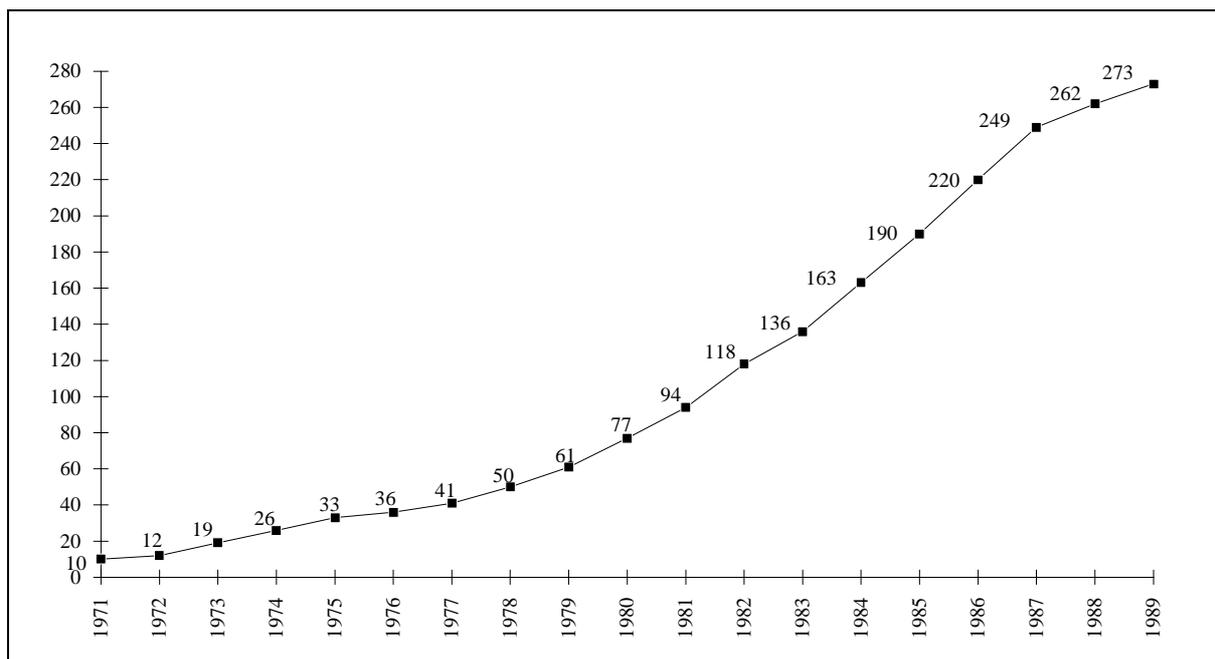


Figure n°2: Evolution du parc mondial des accélérateurs d'électrons utilisés pour le traitement des plastiques - Source: [CPE 92]

Un **irradiateur au cobalt 60** est constitué d'une cellule blindée équipée d'épais murs de béton. Les sources sont généralement placées dans un plan de symétrie de la salle d'irradiation et les colis à irradier circulent autour des cadres qui renferment les sources "crayons". Une piscine, aménagée sous la cellule, permet l'entreposage des sources. Les opérations de chargement et déchargement des sources se font également sous eau au moyen de "perches".

Les activités totales, les plus courantes, des sources utilisées varient entre $1,85 \cdot 10^{16}$ et $7,4 \cdot 10^{16}$ Bq (500 kCi et 2 MCi). Dans le système réglementaire français, ces irradiateurs sont des Installations Nucléaires de Base (INB). Il y a environ 180 installations au cobalt 60 dans le monde. La France en possède 8.

On trouvera dans la publication [CPE 92] une liste non exhaustive du parc mondial des installations industrielles.

2. Les accidents avec accélérateurs d'électrons

Les accélérateurs d'électrons ont surtout fait des victimes en radiothérapie⁽¹⁾. L'accident survenu en décembre 1990, dans un hôpital de Saragosse (Espagne) est certainement le plus grave d'entre eux: au moins 11 personnes sur 27 malades traités pour un cancer par radiothérapie décèdent du fait d'un surdosage important [NEN 92b].

Il existe cependant des accidents qui surviennent dans le domaine de l'industrie et de la recherche. Compte tenu de l'énergie des électrons et des débits de dose très importants, les atteintes observées sont très sévères, notamment au niveau des mains et des avant-bras, et nécessitent souvent, après plusieurs mois de souffrance, une sanction chirurgicale.

Si le plus récent des accidents concerne un physicien nucléaire vietnamien gravement atteint aux mains et aux bras le 17 novembre 1992 (par un faisceau d'électrons de 17 MeV), admis à l'Hôpital Boucicaut à Paris le 23 avril 1993 [AFP 93], il constitue avec ceux de **Forbach** (mi-août 1991) et du **Maryland** (11/12/91) les accidents **les plus graves** survenus auprès d'un accélérateur d'électrons dédié à un usage industriel ou de recherche.

- L'accident de Forbach (août 1991)

Deux manutentionnaires, travailleurs intérimaires recrutés les 1er et 6 août 1991, pénètrent, à un quart d'heure d'intervalle, dans la salle d'irradiation de la Société EBS à Forbach. Ils interviennent pour rafistoler un conduit de ventilation mal placé et fragilisé par le faisceau d'électrons qui délivre, en fonctionnement normal, des débits de dose très élevés (80 000 grays par seconde, soit 8 millions de rad/s) - Voir figure N°3 -

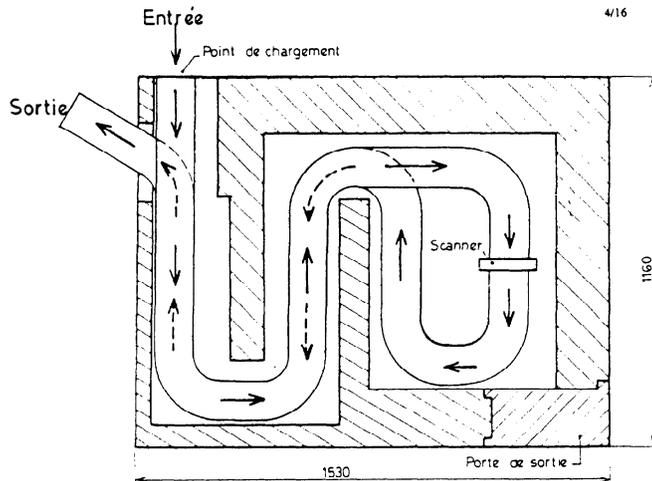


Figure n° 3 : Forbach : Plan de la salle d'irradiation et de ses accès - Source :
[ZER 93b]

En effectuant ces travaux pour lesquels ils n'ont aucune formation, ils opèrent en passant les mains, la tête et le tronc, sous le scanner alors que la source d'électrons est coupée, mais la **haute tension maintenue**. Le débit de dose résiduel se mesure alors en décigrays par seconde (dizaines de rads par seconde).

Ces deux personnes, et tout particulièrement celle entrée la première, seront gravement brûlées (25% et 60% de la surface cutanée). Leur chef d'équipe sera également exposé, mais à un moindre degré (14%) sur les mains et les avant-bras. L'analyse de cet accident grave, pratiquement induit de manière inéluctable par une somme caricaturale de manquements à la Réglementation sur la protection contre les rayonnements ionisants, a également révélé qu'un mois auparavant, le chef d'équipe était entré dans l'installation pour éteindre un feu qui avait pris naissance dans un bac, rempli de matière plastique, bloqué accidentellement sous le scanner. La source avait été coupée, mais la haute tension gardée à 1,7 MV. Le dosimètre,

qui avait enregistré 150 mSv, n'a pas été envoyé en lecture au laboratoire. Cette exposition, qui aurait empêché la survenue de l'exposition grave un mois plus tard est passée inaperçue et n'a donc pas été déclarée aux Autorités compétentes.

Pour ce qui concerne la victime la plus exposée de l'accident de Forbach, les mouvements variés effectués dans le voisinage du scanner ont entraîné une exposition élevée mais hétérogène. Ceci s'est traduit par des manifestations décalées dans le temps. Hospitalisé le 27 août 1991 avec 25% de territoires cutanés brûlés aux 2^e et 3^e degrés, les brûlures se sont progressivement étendues sans que l'on puisse prévoir où elles allaient se manifester. Les médecins ont dû attendre le 22 octobre avant de tenter la première autogreffe, de peur de prélever une zone lésée. A cette date, la surface corporelle était brûlée à 60%. D'octobre 1991 à juin 1993, la victime a subi 17 greffes, 6 semaines de coma provoqué, et 6 mois de chambre stérile.

Le développement du dosimètre photographique a permis d'évaluer à 40 sieverts (4 000 rems) la dose "peau" et à 1 sievert (100 rems) la dose en profondeur. Compte tenu du parcours maximal des électrons de 1,7 MeV (8 mm environ), les dommages concernent au-delà de la peau, des tissus profonds et l'atteinte est ainsi pluri-tissulaire (vaisseaux, tendons, tissus osseux, etc.)

La deuxième victime a ressenti des démangeaisons au cuir chevelu dès la fin de son intervention qui a duré 1/4 d'heure environ. Dans les jours qui suivent, ce manutentionnaire perd ses cheveux, puis est anormalement bronzé. Les brûlures se manifestent sur le bras droit, puis gagnent le dos et le tronc, pour couvrir 25% de la surface du corps. Plus de trois ans après, il souffre toujours de son bras droit, a des troubles du sommeil et présente les signes d'une névrose post-traumatique.

La troisième personne accidentée est le chef d'équipe. Mis à disposition d'EBS par une agence de la Société Manpower le 29 juin 1991, il est embauché le 5 août. Il aura reçu préalablement, les 2 et 3 juillet, une formation à la conduite de l'accélérateur. Pour avoir dirigé les opérations et aidé ses deux collègues, il aura des brûlures au 2^e degré, qui apparaîtront tout d'abord sur la main droite, avant de gagner les deux mains et avant-bras (14% de la surface cutanée) et perdra progressivement ses cheveux sur le haut du crâne [NEN 92b], [ZER 93a], [ZER 93b].

- L'accident du Maryland (décembre 1991)

L'accident grave survenu le 11 décembre 1991 auprès d'un accélérateur d'électrons "Dynamitron" (haute tension = 3 MV et intensité = 25 mA), implanté dans une installation industrielle d'irradiation du Maryland (USA), présente de nombreux points communs avec l'accident de Forbach survenu 4 mois auparavant:

L'Agence chargée de diverses actions réglementaires (autorisations, contrôles, inspections, etc.) portant sur les irradiateurs et générateurs électriques de rayonnement est informée, le 24 décembre 1991, par un coup de téléphone anonyme, que des brûlures radiologiques ont été occasionnées à un homme de 28 ans. L'exposition accidentelle a eu lieu le 11 décembre 1991. Le 26 décembre l'installation est inspectée. Quatre jours plus tard, elle est arrêtée [SCH 93].

Cet accélérateur était, comme à Forbach, consacré à l'irradiation de téflon sous diverses formes (granulés, fils, copeaux). Placée sur un convoyeur, la matière défile sous un "scanner". L'appareil était arrêté le 11 décembre 1991 pour maintenance. La double fenêtre en titane, qui permet le maintien du vide dans le scanner, a été changée puis testée, une quinzaine de minutes, au maximum de tension et d'intensité. A l'issue du test, l'employé qui est dans l'entreprise depuis un an et demi pénètre dans la salle d'irradiation, l'anode étant coupée mais la **haute tension maintenue**.

L'intensité du courant (appelé courant "sombre" ou courant "froid") est approximativement égale à 50 micro A (soit 500 fois moins qu'en fonctionnement normal). Les clignotements des signalisations lumineuses sont ignorés par l'opérateur, car il sait qu'ils indiquent le maintien de la haute tension et non de l'émission dangereuse de rayonnements.

Dans la "chaîne de sécurité" se trouvent bien trois détecteurs d'accès - voir sur la figure N°4 leurs emplacements - équipés de cellules photoélectriques. Ces systèmes arrêtent automatiquement l'accélérateur si un des faisceaux lumineux est coupé.

Toutefois, le premier passage a été équipé, sans que les Autorités en soient informées, d'un interrupteur placé en position "off" lors de l'accident. La seconde "porte" a été munie de cellules photoélectriques placées à 1,22 m au-dessus du sol. Elles ont été évitées en passant en-dessous du faisceau lumineux.

Par ailleurs, un système de détection par pression, qui se déclenche sous le poids de la personne qui marche dessus, a également été retiré sans l'accord de l'Agence. Il n'y avait alors plus d'obstacle pour atteindre la zone très dangereuse du scanner.

L'enquête conduite par l'Agence devait révéler que ce court-circuit des systèmes de sécurité était routinier.

Dès le lendemain (12/12/91), l'annulaire, le majeur et l'index de la main gauche de l'opérateur viraient au bleu comme s'ils avaient pris un coup de marteau. Le

surlendemain, les doigts virent au rouge, enflent et deviennent douloureux. La dose reçue aux extrémités sera évaluée à $55 \pm 3,5$ grays.

Il sera nécessaire d'amputer, 3 mois après l'accident, quatre doigts de la main droite et la majeure partie des quatre doigts de la main gauche [SCH 93].

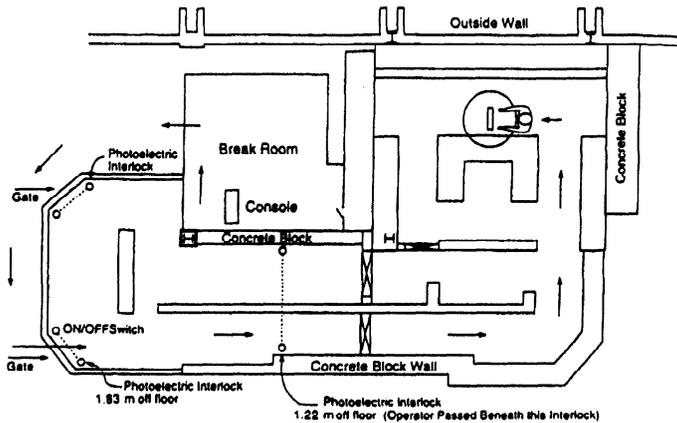


Figure n° 4 : Maryland : Plan de la salle d'irradiation et de ses accès - Source : [SCH 93]

- L'accident survenu au Vietnam (novembre 1992) :

En novembre 1992, un physicien qui effectue une expérience auprès d'un accélérateur d'électrons prototype de 17 MeV implanté à l'Institut de Physique Nucléaire d'Hanoi est accidenté. L'appareil, de fabrication soviétique, est implanté dans une cellule blindée ceinturée d'un mur de béton de 1,4 m d'épaisseur. Le faisceau d'électrons qui interagit avec une cible de tungstène produit des photons et des neutrons.

Lorsque la salle est en accès libre, les expérimentateurs viennent disposer leurs échantillons face à la cible. Les temps d'exposition sont fixés empiriquement, car le système ne permet pas d'évaluer la dose délivrée à l'échantillon. A l'issue de l'arrêt manuel du faisceau, les expérimentateurs viennent chercher leurs éléments irradiés afin de les analyser. Si les expérimentateurs possèdent une formation scientifique supérieure, il ne leur a pas été délivré de formation à la radioprotection. En outre, ils ne disposent pas de matériel de mesure de dose portatif de qualité. L'accélérateur n'est pas muni de «chaîne de sécurité» et l'évacuation de la salle, avant la mise sous faisceau, est faite par simple avertissement oral. Seuls, deux signaux lumineux clignotants, placés à l'intérieur et à l'extérieur de l'entrée,

informent de la présence du faisceau.

Peu avant l'accident, le physicien quitte la salle d'irradiation avec son assistant après avoir disposé son échantillon devant la cible de tungstène. Tandis que l'assistant se dirige vers la salle de commande pour demander aux opérateurs la mise sous faisceau, le physicien, non satisfait de la position de son échantillon, retourne dans la salle.

Il passe ainsi les mains à proximité de la cible de tungstène sans avoir entendu le bruit particulier du magnétron qui est couvert par la forte ambiance sonore de la salle. L'assistant va à la rencontre du physicien et ne le trouvant pas, court vers la salle de commande pour demander l'arrêt du faisceau.

L'exposition accidentelle a duré 2 à 4 minutes, sous 15 MeV et 6 microampères.

Le physicien prend conscience de son exposition éventuelle. Il place alors ses mains près du détecteur de sa chaîne de mesure spectrométrique gamma. En 30 secondes, un pic de 0,511 MeV caractéristique des émetteurs β^+ produits par activation dans les tissus apparaît.

Dix jours après l'accident, la peau de la face palmaire des mains se met à peler. Deux semaines après, un érythème se développe ainsi qu'un œdème. Il est admis dans un hôpital spécialisé dans le traitement des brûlures, 24 jours après l'accident. Après une période de répit, les douleurs reprennent. Il est transporté et hospitalisé à Paris, le 23 avril 1993 à l'hôpital Boussicot.

En juillet, la décision d'amputer la main droite est prise.

Vers décembre 1993, une nouvelle et inattendue atteinte de la main gauche nécessite l'amputation d'un doigt. Les douleurs disparaissent enfin.

Les débits de dose, mesurés à 5 cm de la cible de tungstène sont de l'ordre de 1 000 grays par minute. La mesure du taux d'aberrations chromosomiques a permis d'évaluer la dose moyenne reçue par l'organisme entier à environ 1,5 gray [WHE 94].

3. Les accidents avec irradiateurs utilisant des sources radioactives.

Les expositions **globales** les plus graves, concernant des professionnels, s'observent principalement auprès d'irradiateurs industriels utilisant des sources de cobalt 60 qui peuvent avoir une activité totale de plusieurs centaines de milliers de curies.

A l'occasion d'un dysfonctionnement, l'opérateur pénètre dans la salle d'irradiation pour remédier à l'anomalie alors que tout ou partie des sources est en position d'irradiation. Il court-circuite pour cela un ou plusieurs dispositifs de sécurité. Plusieurs cas graves ont ainsi été rapportés:

- Italie (1975)

Le 13 mai 1975, une personne intervient durant quelques minutes dans une installation d'irradiation industrielle de céréales au nord de l'Italie. Une source de cobalt 60 supposée être dans son dispositif de stockage est, en fait, sortie. Durant l'intervention, le visage est irradié à des doses très élevées: 14 à 18 sieverts (1400 à 1800 rems). De manière globale, 87% de la moelle osseuse a reçu une dose supérieure à 800 rems et 13% entre 400 et 800 rems. L'évolution a été très rapide et le décès est survenu 13 jours après l'accident [CFD 80], [GON 86], [PAR 79].

- San Salvador (1989)

Le 5 février 1989, à San Salvador (capitale du Salvador), trois personnes pénètrent dans une installation d'irradiation industrielle pour débloquent un porte-source.

Cette installation industrielle, mise en service en 1975, stérilise diverses fournitures médicales préemballées (poches pour produits sanguins) et placées dans des conteneurs en fibre de verre, au moyen d'un irradiateur gamma, de type JS6300, construit et installé par l'Energie Atomique du Canada (EAC). Les sources de cobalt, de type "crayons" sont assemblées dans un porte-source sous forme de barreaux. Les modules ainsi constitués sont stockés sous eau.

Le porte-source, guidé à ses extrémités par deux câbles tendus sur lesquels il coulisse, est hissé en position d'irradiation au moyen d'un câble de levage.

En 1975, s'est produit un premier accident occasionné par un colis qui entravait le mouvement du porte-source. L'EAC a pu intervenir dans des délais normaux et procéder aux réparations. Cependant, l'état de guerre civile qui sévit depuis 1979 au Salvador a pratiquement empêché toute intervention du fabricant pour effectuer des travaux de maintenance. Des incidents survenus aux Etats Unis, notamment, ont conduit l'EAC à préconiser une modification de l'appareil et à éliminer les conteneurs douteux ou endommagés. Pour des raisons de coût, cette transformation et ces changements n'ont pas été réalisés, tandis que plusieurs "modes opératoires" ont été substitués à ceux préconisés par le constructeur.

La dégradation des matériels et des systèmes de sécurité, associée à une perte progressive de vigilance et au manque total d'information sur les risques radioactifs, ont conduit à la situation accidentelle.

Une personne a tenté de débloquent seule le porte-source en intervenant, après avoir coupé l'alimentation électrique de l'installation, pensant qu'à l'instar des générateurs électriques de rayonnement, l'exposition cesserait. Peu de temps après, cette personne intervient avec deux aides appelés en renfort. Ils ne connaissent ni l'installation, ni les dangers des rayonnements ionisants.

Ensemble, ils dégagent le porte-source en tirant sur le câble, puis ils replongent le tout en fond de piscine. C'est en observant la lumière bleutée du "rayonnement Tchérénkov" autour des sources immergées, que la première personne comprend alors la gravité de la situation. Quelques minutes après, elle est prise de vomissements. Une demi-heure plus tard, elle vomit du sang.

Les vomissements gagnent alors les deux autres accidentés qui seront hospitalisés. Les médecins diagnostiquent un empoisonnement alimentaire et renvoient les patients chez eux, en congé de maladie de 3 jours. Le technicien qui était en poste lors de l'accident retourne à l'hôpital dès le 3^e jour car il souffre de nausées, de vomissements, mais aussi d'un érythème généralisé associé à des brûlures aux pieds, aux jambes, et d'œdèmes aux mains. La brûlure radiologique est alors diagnostiquée et la victime placée dans une chambre aseptique improvisée.

A son tour, le premier aide commence à souffrir de douleurs aux pieds, le 7^e jour. Le second, qui perd ses cheveux, est hospitalisé le 20^e jour.

Les doses moyennes reçues par les trois accidentés ont été estimées par des évaluations (dans un hôpital de Mexico et au Centre spécialisé d'Oak Ridge) fondées sur une analyse **cytogénétique**. Les valeurs moyennes sont relativement en accord avec les doses **calculées** par Oak Ridge (REAC/TS):

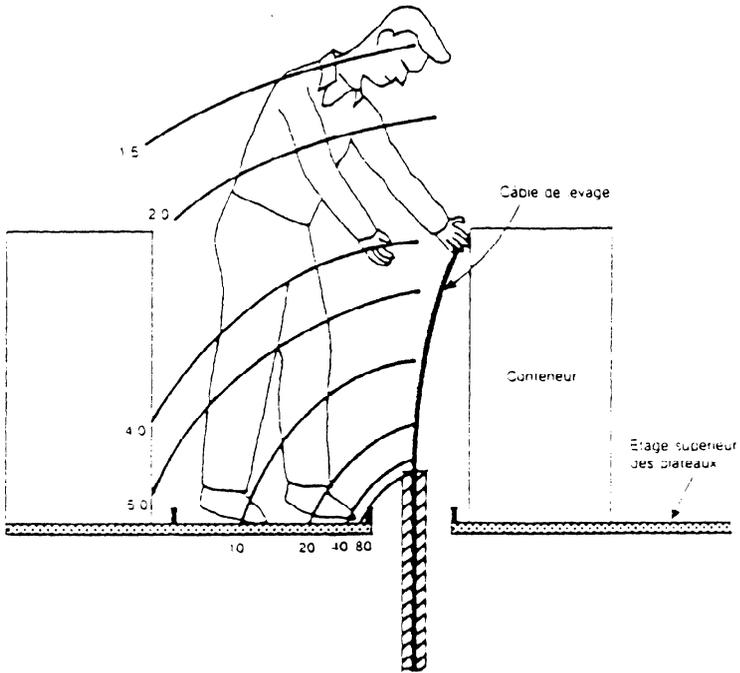
1^{er} patient \Rightarrow 8,1 grays (dose calculée = 6 à 8 Gy)

2^e patient \Rightarrow 3,7 grays (dose calculée = 6 à 8 Gy)

3^e patient \Rightarrow 2,9 grays (dose calculée = 2 à 4 Gy)

La figure 5 illustre les débits de dose, exprimés en grays par minute, pour les deux positions "types" prises à certains moments par les trois victimes

Les deux premières victimes, gravement blessées aux jambes et aux pieds, ont subi une amputation du pied au-dessus du genou, les 16 juin et 15 juillet 89. La personne exposée à une dose létale décède 6 mois et demi après l'accident. [AIE 90], [CRO 89].



Courbes isodoses pour une personne debout: Débits en Gy·min⁻¹.

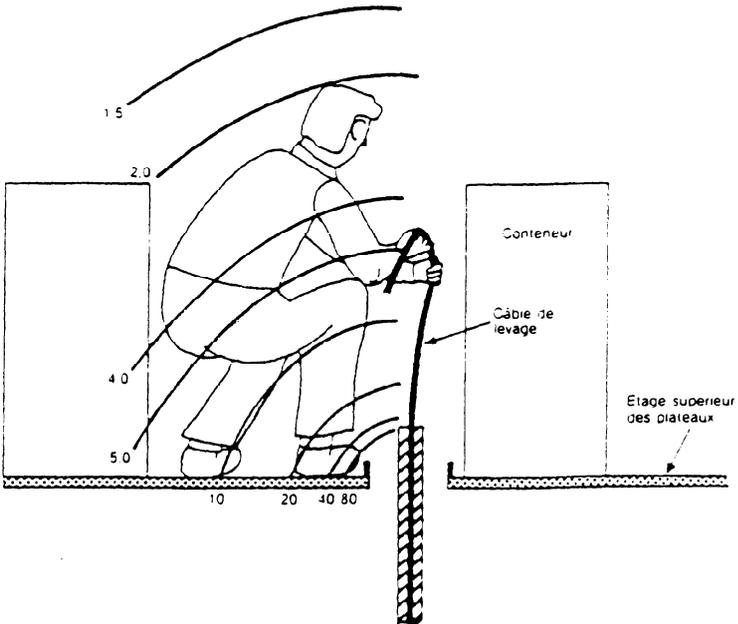


Figure n° 5 : San Salvador: courbes isodoses pour une personne debout et accroupie. Débits en grays par minutes.

-Israël (1990)

Le 21 juin 1990, en Israël, un technicien de la Société Sor-Van Radiation Ltd, qui interprète de manière erronée deux signaux d'alarmes contradictoires, pénètre dans la salle d'un irradiateur de 340 000 curies de cobalt 60 construit et installé par l'Energie Atomique du Canada (même type que l'irradiateur du San Salvador). Il utilise deux clés complémentaires qui lui permettent de court-circuiter les sécurités. Une minute après son entrée dans la salle d'irradiation, il a des sensations de brûlures oculaires et de pression crânienne.

La victime est hospitalisée à Tel-Aviv 2 h 15 après l'accident, puis transférée au Service de Transplantation de moelle de l'Hôpital Hadassah à Jérusalem, 8 heures après l'accident. Elle présente très rapidement des signes (érythème sur le visage et la face palmaire des mains, 40,7 C de température) ainsi que des symptômes d'une atteinte hématologique et gastro-intestinale sévère, caractéristiques des très fortes irradiations. La dose équivalente reçue est comprise entre 10 et 20 sieverts. La dose létale est donc significativement dépassée. La recherche d'un donneur de moelle, dans les registres internationaux, étant négative, le prélèvement est fait sur le frère de la victime, le 4^e jour suivant l'accident.

Malgré la mise en œuvre précoce des premières mesures sanitaires et les soins de qualité dont elle a été l'objet, la victime décède 36 jours après, des suites d'atteintes digestives et pulmonaires graves [AIE 93] [NEN 91a].

Biélorussie (1991)

Le 26 octobre 1991, dans une petite ville près de Minsk (Biélorussie), un employé de 34 ans pénètre dans la salle d'irradiation d'une installation équipée de sources de cobalt 60. Afin de remédier à des défauts de convoyage de produits à irradier (comme à Forbach), son entrée (1 à 4 minutes) a été faite en court-circuitant les dispositifs de sécurité. La dose efficace reçue est supérieure à 10 sieverts; elle entraîne habituellement le décès de la personne exposée dans les jours qui suivent l'accident.

La victime est évacuée rapidement et placée en chambre stérile. L'équipe médicale responsable est aussi celle qui s'est occupée des victimes de Tchernobyl. Plusieurs organes ou tissus ont progressivement montré des signes de défaillance. Malgré les soins de qualité, le décès survient 3 mois et demi après (12 février 1992), des suites d'une infection généralisée du poumon et de fortes hémorragies intestinales [NEN 92a].

4. Les conséquences radiologiques :

D'une manière générale, les dommages corporels occasionnés par des équivalents de dose délivrés à fort débit et pour des expositions qui se mesurent en minutes ou en heures, sont bien décrits dans plusieurs publications [JAM 81], [GON 84], [GON 91], [MAR 92], [NEN 92b].

Ces atteintes, qui se manifestent au bout de quelques jours ou semaines, concernent le plus souvent des zones localisées au niveau des doigts ou de la main, par exemple. En situation accidentelle, les brûlures radiologiques **étendues** sont plutôt rares, si l'on excepte celles observées sur les victimes les plus sévèrement touchées au San Salvador et à Forbach.

5. Analyse des situations accidentelles graves

- Les modifications importantes des propriétés physiques d'un grand nombre de produits irradiés, tels que:
 - le durcissement des huiles et graisses;
 - la fragilisation des cartons, bois, plastiques, colles et liants divers;
 - l'altération des caractéristiques de divers composants électriques ou électroniques,peuvent être initiatrices de situations accidentelles.
- Il est donc nécessaire de procéder, dès la conception de l'appareil, à l'examen des moyens visant à protéger les divers éléments jouant un rôle important pour la sûreté de l'installation et la sécurité des personnels.
- Il faut également prévoir la rédaction:
 - de prescriptions techniques portant sur le changement préventif d'éléments importants (arrêt d'urgence, câbles, système électronique, etc.)
 - de modes opératoires pour la réalisation des tests périodiques de la "chaîne de sécurité",
 - de procédures d'intervention en situations normales et particulières.
- La "chaîne de sécurité", qui regroupe tous les états ou fonctions à assurer en séquence pour autoriser, d'une part, la mise sous faisceau ou le maintien de la

source de rayonnements (générateur électrique ou source radioactive) et, d'autre part, l'accès à la casemate d'irradiation, est un élément clé de la sécurité.

➤ Un effort particulier doit être entrepris pour rendre **inviolables** les différentes fonctions de la chaîne: la transgression des fonctions de la chaîne de sécurité a entraîné de graves accidents, notamment dans le Maryland et à Forbach où le contrôle d'intrusion dans la chicane du convoyeur était mis hors circuit ou aisément contourné.

➤ Les interventions "hors routine", mises en œuvre lors de situations particulières, doivent, lorsqu'elles conduisent à modifier une ou plusieurs séquences de la "chaîne de sécurité", faire l'objet de **procédures écrites et validées** préalablement: l'action **improvisée** d'une personne **seule** présente toujours un risque élevé d'accident grave.

➤ Aux éléments de la "chaîne de sécurité" autorisant l'accès en casemate, il convient d'ajouter un ultime élément, indépendant des autres, permettant de vérifier, par une mesure, l'absence de rayonnement.

- Exception faite des irradiateurs qui assurent la circulation des produits le long d'une "chicane", installations pour lesquelles on peut observer un certain débit de dose dans l'axe du convoyeur, ces appareils industriels ne délivrent pratiquement pas de dose aux opérateurs en fonctionnement normal.

Par ailleurs, les commandes de début et fin d'irradiation sont simples et l'activité quotidienne des servants de la machine, en milieu industriel, est **routinière**. Elle se borne principalement à des travaux de manutention. Il n'est donc fait appel aux connaissances techniques et au savoir-faire qu'en situation d'anomalies, qui peuvent être rares, ou lors des opérations de maintenance préventive.

➤ Toutes ces conditions ne sont pas favorables à la vigilance de tous les instants que les dangers potentiels requièrent.

- La formation et l'information périodiques sur la protection contre les dangers des rayonnements ionisants doivent être assurées pour toutes les personnes qui interviennent dans les installations où est implanté un irradiateur. Cette formation devrait prendre en compte, en plus de l'information générale sur les risques, l'examen de situations incidentelles ou accidentelles survenues auprès de divers irradiateurs dans le monde.

6. Conclusions

Bien que relativement rares, des accidents radiologiques aux conséquences sévères surviennent dans le domaine industriel. Des irradiations particulièrement graves se produisent généralement lorsqu'un opérateur inhibe volontairement des sécurités afin d'intervenir lors d'une défaillance technique. Ces comportements sont souvent le fait de personnes qui n'ont pas été informées des risques graves liés aux expositions à forts débits de dose délivrés par les accélérateurs ou les irradiateurs industriels. Il arrive cependant que des professionnels ayant plusieurs années d'expérience soient également impliqués dans des accidents graves et parfois mortels. Lors de la survenance d'une anomalie de fonctionnement, on ne peut donc exclure qu'une baisse de vigilance puisse affecter un professionnel averti.

La formation et l'information réitérées sur les risques présentés par les rayonnements, le contrôle radiologique systématique (automatique et manuel) des rentrées de sources dans leur logement de protection avant de pénétrer dans la salle d'irradiation, et l'inviolabilité technique de la chaîne de sécurité associée à l'irradiateur permettent de réduire les risques d'accidents.

BIBLIOGRAPHIE

[AFP 93] Agence France Presse - *"Un physicien vietnamien irradié, soigné en France"* - Communiqué - N°241 139 (24 avril 1993).

[AIE 90] AIEA - *"L'accident radiologique de San Salvador"* - Rapport AIEA - Vienne - (décembre 1990).

[AIE 93] AIEA - *"The radiological accident in Soreq"* - Rapport AIEA - Vienne - (mai 1993)

[CFD 80] Syndicat CFDT de l'Energie Atomique *"Le dossier Electronucléaire"* Collection Point Sciences, Ed. Le Seuil, pp.125-129 et 302-309.

[CPE 92] Centre de Prospective et d'Etude - *"Les applications industrielles des rayonnements"* - Editeur : "Innovation 128" - 24, rue du Quatre Septembre 75002 PARIS - (1992)

[CRO 89] CROFT J.R., ZUNIGA-BELLO P., KENNEKE A. "Recovery Operations in the event of a Nuclear Accident or Radiological Emergency" -pp575-584 - AIEA - Vienne - 6-10 November 1989.

[GON 84] GONGORA R. "Irradiations accidentelles et thérapeutiques" Juin 1984 à Créteil - Edité par Galle P., Masse R., Nenot J.C.

[GON 86] GONGORA R., FAES M. H. "Problèmes d'intervention médicale à mettre en œuvre en cas de surexposition aux rayonnements ionisants" Luxembourg - Rapport CCE - EUR 11370R (Février 1986)

[GON 91] GONGORA R. International Congress of "Medical aspects of radiation protection in Europe". Venise - October 28-31, 1991.

[JAM 81] JAMMET H. ET GONGORA R. 3ème congrès de l'Association Italienne de Radioprotection Médicale - Saint Vincent (Italie) - 13/15 septembre 1981 - Ed. Ernesto Strambi (Italie).

[MAR 92] MARTIN M., LEFAIX J.L. Radioprotection, **27**, N°2, (1992).

[NEN 91a] NENOT J.C. Radioprotection, **26**, N°2, pp 423-424, (1991).

[NEN 92a] NENOT J.C. "Radioprotection, **27**, N°3, pp 337-338, (1992).

[NEN 92b] NENOT J.C. "*Les surexpositions accidentelles*" Rapport DPHD/93-04, 63 pages, Novembre 1992 Editeur : CEA-IPSN - Fontenay aux Roses

[PAR 79] PARMENTIER N., NENOT J.C., JAMMET H. "Medical Basis for Radiation Accident Preparedness" October 18-20, 1979, Oak Ridge - USA Edited by Elsevier North Holland, New York, pp 91-129 - (1980).

[SCH 93] SCHAUER D.A., COURSEY B.M., DICK C. E., MC LAUGHLIN W.L., PUHL J.M., DESROSIERS M.F., JACOBSON A.D. Health Physics, **65** N° 2, pp. 131-140, (1993).

[WHE 94] WHEATLEY J. Radiological Protection Bulletin. N° 150, pp. 12-14 (février 1994)

[ZER 93a] ZERBIB J.C. - Séminaire SFRP sur la "Sécurité des sources radioactives scellées et des générateurs électriques de rayonnements" - Saclay (9 et 10 juin 1993)

[ZER 93b] ZERBIB J.C.- Revue de Préventique, **6**, pp. 33-39 (août-septembre 1993)

Abstract

During the last 30 years the use of two types of industrial irradiators, electron accelerators and Co-60 sources, has increased considerably. The global inventory is given. The most severe accident conditions which have occurred on such installations are analysed. Attention is given to the health detriment, to the dynamics of the effects and to the medical follow-up.

Some severe accidents concern workers with limited experience. Due to a lack of real risk insight, people regularly violate safety circuitry. However mortal accidents also occur with workers having a long experience.

From the different severe accident conditions a set of initiating elements is deduced.

It essentially concerns materials modified by radiation effects (grease degradation, plastic embrittlement, e.a.). Another cause is the possibility to short-circuit safety systems.

The knowledge base of the different accidental situations, their analysis, the corrective actions, and the information of operators on the feedback of experience, are effective means of radiological prevention against severe radiation accidents.

Samenvatting

Het gebruik van twee types industriële stralingsapparaten, elektronenversnellers en Co-60 bronnen is de voorbije dertig jaar sterk toegenomen. De evaluatie van het mondiaal bestand ervan is toegelicht.

De omstandigheden van de zwaarste ongevallen zijn beschreven, naast de veroorzaakte gezondheidsaandoeningen van de slachtoffers, de dynamiek van de letsels en de medische opvolging.

Sommige zware ongevallen betreffen nieuwe acceleratorwerknemers.

De schending van veiligheidscircuits is vooral het gevolg van de miskennis van de potentiële zware risico's. Sommige dodelijke ongevallen treffen evenwel ook zeer ervaren werknemers.

Een analyse van de diverse zware ongevalsomstandigheden is voorgesteld om de factoren te omschrijven die het ongeval hebben mogelijk gemaakt.

Het betreft in hoofdzaak materialen die door straling werden aangetast (oliën, plastic, e.a.) of de kortsluiting van veiligheidssystemen.

De kennis van deze diverse ongevalssituaties, hun analyse, de invoering van correctiemaatregelen en het informeren van de operatoren over de feedback van ongevalservaringen zijn de doeltreffende middelen om zware stralingsongevallen door radiologische preventie te voorkomen.