CEA-R-35

10.2

PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

MISE AU POINT D'UNE MÉTHODE DIRECTE DE DÉTERMINATION DE LA CHARGE Corporelle en plutonium 239 chez L'Homme par détection X de l'uranium 235

par

Pierre BOULAY

CENTRE D'ÉTUDES DE BRUYÈRES-LE-CHATEL

Rapport CEA-R-3559

1968 _{Ha}

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N.SACLAY B.P. n*2, 91.GIF-sur-YVETTE-France

CEA-R-3559 - BOULAY Pierre

MISE AU POINT D'UNE MÉTHODE DIRECTE DE DÉTERMINATION DE LA CHARGE CORPO-RELLE EN Pu-239 CHEZ L'HOMME PAR DÉTECTION X DE L'U-235.

Sommaire :

L'utilisation à une échelle de plus en plus large du plutonium-239 pose un problème de la mesure de la contamination par aérosol au niveau du poumon. Une méthode de mesure directe de la charge pulmonaire en plutonium-239 est possible grâce à l'utilisation d'un compteur proportionnel à fenêtre de grande surface. Un compteur de ce type a spécialement été réalisé dans ce but. La mise au point de l'appareillage permet une sensibilité suffisante pour déceler une contamination au niveau de la Q.M.A. D'autre part, une méthode « d'étalonnage interne » de l'individu à l'aide d'un simulateur de plutonium, le protactinium-233, est décrite.

1968

92 pages

Commissariat à l'Energie Atomique -- France.

CEA-R-3559 - BOULAY Pierre

ADJUSTEMENT OF A DIRECT METHOD FOR THE DETERMINATION OF MAN BODY BURDEN IN Pu-239 BY X-RAY DETECTION OF U-235.

Summary :

The use of Pu-239 on a larger scale sets a problem about the contamination measurement by serosol at

A mathed of direct measurement of Pu-239 lung burden is possible, thanks to the use of a large aera window proportional counter. A counter of such pattern, has been especially carried out for this purpose. The adjustement of the apparatus allows an adequat sensibility to detect a contamination at the maximum parallesible body burden level.

permissible body burden level. Besides, a method for individual « internal calibration », with a plutonium mock: the protactinium-233, is reported.

1968

92 pages

Commissariat à l'Energie Atomique -- France.

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui recoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7^e.

PLAN DE CLASSIFICATION

8.

1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS

2. BIOLOGIE ET MEDECINE

- 2. 1 Biologie générale
- 2. 2 Indicateurs nucléaires en biologie
- Médecine du travail **2**. 3
- **2.** 4 Radiobiologie et Radioagronomie
- 2.5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine

3. CHIMIE

- Chimie générale 3. 1
- **3.** 2 Chimie analytique
- Procédés de séparation **3.** 3
- 3.4 Radiochimie

4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE

5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE

METAUX, CERAMIQUES 6. ET AUTRES MATERIAUX

- 6. 1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux
- 6. 2 Effets des rayonnements sur les matériaux
- **6.** 3 Corrosion

7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS

- 7. 1 Neutronique et physique des réacteurs
- 7. 2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité
- 7. 3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs

PHYSIQUE

- 8.1 Accélérateurs
- 8.2 Electricité, électronique, détection des rayonnements
- 8.3 Physique des plasmas
- 8. 4 Physique des états condensés de la matière
- 8.5 Physique corpusculaire à haute énergie
- 8. 6 Physique nucléaire
- 8.7 Electronique quantique, lasers

PHYSIQUE THEORIQUE 9. ET MATHEMATIQUES

10. PROTECTION ET CONTROLE DES **RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS**

- **10.** 1 Protection sanitaire
- 10. 2 Contrôle des rayonnements
- 10. 3 Traitement des effluents

SEPARATION DES ISOTOPES 11.

12. TECHNIQUES

- 12. 1 Méconique des fluides Techniques du vide
- 12. 2 Techniques des températures extrêmes
- 12. 3 Mécanique et outillage

UTILISATION ET DEVELOPPEMENT 13. DE L'ENERGIE ATOMIQUE

- 13. 1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines
- 13. 2 Etudes économiques, programmes
- 13. 3 Divers (documentation, administration, législation, etc...)

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du nº 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

The C.E.A. reports starting with nº 2 200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

A LA FACULTÉ DES SCIENCES **DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS**

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

Mise au point d'une méthode directe de détermination de la charge corporelle en plutonium 239 chez l'homme par détection X de l'uranium 235

MM.



PRÉSENTÉES

POUR OBTENIR

PAR

Pierre BOULAY

PREMIÈRE THÈSE

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 23 Avril 1968 devant la Commission d'Examen

M. LEFORT	Président
M. AVARGUES	Eveminetoure
A. LANSIART	
L. JEANMAIRE	Invité

- Rapport CEA-R-3559 -

Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel

MISE AU POINT D'UNE METHODE DIRECTE DE DETERMINATION DE LA CHARGE CORPORELLE EN PLUTONIUM 239 CHEZ L'HOMME PAR DETECTION X DE L'URANIUM 235

par

Pierre BOULAY

.

Novembre 1968

Je prie Monsieur le Professeur Marc LEFORT, qui a bien voulu patronner mon travail, de recevoir l'expression de ma respectueuse gratitude.

Je remercie Monsieur le Professeur Marcel AVARGUES, Monsieur Alain LANSIART, Docteur ès-Sciences et Monsieur Lucien JEANMAIRE qui me font l'honneur de juger ce travail.

Ce m'est un devoir agréable de remercier M. P. LAURENT, Directeur du Centre d'Etudes de BRUYERES-le-CHATEL et M. le Docteur DOMERGUE, Médecin Chef de la D.A.M. qui ont bien voulu m'accorder toutes facilités matérielles pour l'accomplissement de ce travail.

Je remercie également M. le Docteur ROYNETTE, Chef du Groupe Médical d'avoir bien voulu autoriser l'exécution des mesures expérimentales au sein de son service.

M. J. J. CHIVOT, Chef du Laboratoire Médical de BRUYERES-le-CHATEL et M. J. P. MORUCCI de la S. E. P. SACLAY m'ont prodigué de précieux conseils ; qu'ils trouvent ici mes remerciements et l'expression de ma reconnaissance.

Je remercie M. le Docteur MATHIEU et M. le Docteur PRUNIN d'avoir bien voulu suivre avec bienveillance l'évolution de ce travail.

Que Monsieur LELOUP, Madame COURTOIS, Mademoiselle LABAT et Mademoiselle DAVOUST trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour l'aide qu'ils m'ont prodigué.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION

CHAPITRE I.

LE PLUTONIUM ET SA DETECTION

- I. 1 Le plutonium
- I. 2 Les risques radioactifs
- i. 3 La mesure du plutonium

CHAPITRE II.

LE CHOIX DE L'APPAREILLAGE

II. 1 - Les différents types d'appareillages :

- détecteur à scintillation
- compteurs proportionnels
- choix du compteur proportionnel

II. 2 - Les différentes réalisations :

- · Rundo et coll.
- Maushart et coll.
- Ramsden
- Morucci
- choix du compteur Morucci

CHAPITRE III.

L'APPAREILLAGE UTILISE

III, 1 - Description du compteur Morucci

- a) rôle de l'électronique
- b) description du matériel
 - c) réglage de l'électronique

III. 3 - Le bruit de fond :

a) origine

- b) la réduction du bruit de fond
 - blindage
 - anticoïncidence
 - pureté des matériaux
 - résultats

CHAPITRE IV.

LES MESURES "IN VITRO"

- IV. 1 Conditions de mesures
- IV. 2 Le thorax artificiel
- IV. 3 La position du compteur
- IV. 4 Estimation de l'activité perçue par le compteur
- IV. 5 Estimation de l'activité naturelle du corps humain dans le bruit de fond.
- IV. 6 Contribution d'une contamination en americium 241
- IV. 7 La précision des mesures

CHAPITRE V

LES MESURES "IN VIVO"

- V. 1 La morphologie de l'individu
- V. 2 Les simulateurs de plutonium
- V. 3 Le protactium 233
- V. 4 Les mesures sur les animaux
- V. 5 L'étalonnage interne de l'individu

CONCLUSION

- La réalisation définitive
- L'estimation d'une contamination

Problème posé

Dans le domaine de la protection contre les radiations, le contrôle de la contamination par radioéléments des personnes travaillant dans les disciplines nuclépres est un des plus importants.

Certains de ces radioéléments sont particulièrement dangereux du fait de leur toxicité et de la difficulté à les déceler inhérente à la nature de leur rayonnement : c'est le cas du plutonium 239.

Bien que les conditions de travail soient sévèrement contrôlées, le risque de contamination accidentelle n'est pas exclu. La toxicité chimique du plutonium est négligeable comparée à la toxicité due à la radioactivité. Le plutonium est un émetteur α dont l'énergie moyenne est de 5,14 MeV.

En 1955, la Commission Internationale de Protection contre les Radiations (1) a défini les doses maximales admissibles dans différentes parties du corps. Elles varient selon que le plutonium est soluble ou insoluble.

La surveillance des personnes soumises à des risques de contamination se fait par des méthodes basées sur le métabolisme du plutonium : mesures d'excréta tels que urine, fécès, mucus nasal.

Le faible pourcentage de la quantité de plutonium excrété journellement dans les urines rend l'estimation de la charge difficile. On sait d'autre part qu'un individu peut retenir 80 % de la dose initiale reçue 50 ans après la contamination. Les méthodes de mesures indirectes, si elles permettent d'apprécier de faibles niveaux d'activité, présentent l'inconvénient d'être très longues et délicates. Pour connaitre la contamination totale, elle oblige à des extrapolations marquées d'erreurs difficiles à apprécier.

Les contaminations se produisent généralement par l'air inhalé. Les méthodes de mesure indirecte pour déceler le plutonium insoluble dans les poumons sont très imprécises (15).

auteurs (2, 3, 4, 5, 6).

Comme il n'est pas possible d'utiliser l'émission α du plutonium 239 pour une mesure directe, il est nécessaire de détecter les raies XL de l'uranium 235 (13,6 keV - 17,2 keV - 20,2 keV) dont l'abondance est de 4 % par désintégration α du plutonium 239. Mais ces raies X sont fortement absorbées : 0,6 cm d'épaisseur (20) de tissu musculaire ou 300 µ d'os ne laissent passer que la moitié du rayonnement émis. Il est donc impossible de détecter le plutonium dans le squelette, de l'extérieur - en revanche, il est plus facile de faire une mesure sur une blessure – si elle n'est pas trop profonde (3 cm maximum).

En ce qui concerne la mesure des contaminations pulmonaires, la faible densité du tissu offre une possibilité de détection. Mais jusqu'à présent, la technique de détection du plutonium dans les poumons est

INTRODUCTION

L'organe critique pour les aérosols de plutonium insoluble est le poumon.

La connaissance de la charge pulmonaire en plutonium du personnel qui manipule cet élément reste un souci majeur pour la surveillance médicale. Ce problème a d'ailleurs retenu l'attention de nombreux

Une mesure directe serait la méthode idéale.

restée théorique devant les énormes difficultés qu'elle présente. Elle nous a paru cependant possible grâce aux récents compteurs proportionnels à fenêtre de grande surface à condition de réduire au maximum le bruit de fond et d'employer un simulateur convenable de plutonium pour un étalonnage in vivo.

C'est sur la résolution de ce problème que porte l'essentiel de notre travail.

Etudes effectuées

Quelques auteurs proposent des appareillages destinés à la mesure du plutonium au niveau du poumon. Ils se caractérisent surtout par le type de détecteur adopté : cristal scintillateur ou, le plus souvent, compteur proportionnel. Les solutions retenues sont toujours le résultat de compromis entre la surface de détection du compteur, ses qualités spectrométriques, le rendement de détection du gaz de remplissage et le bruit de fond.

Après une rapide étude bibliographique sur le plutonium, nous passons en revue les différentes formes de contamination et les moyens de les déceler.

Nous examinons ensuite les réalisations actuelles et nous présentons la solution que nous avons retenue.

Nous décrivons la version effectivement réalisée. Nous étudions les caractéristiques de nos appareils, leur performance et les méthodes d'étalonnage notamment par l'utilisation d'un thorax artificiel spécialement construit à cet effet.

En ce qui concerne la définition d'une technique de mesure du plutonium in vivo dans le poumon. nous présentons une méthode originale "d'étalonnage interne" de l'individu, basée sur l'utilisation d'un plutonium simulé : le protactinium 233.

Après une série de mesures sur animaux, nous avons réalisé un générateur d'aérosols pour les inhalations humaines.

Les résultats obtenus sont analysés et une technique de mesure est définie. Enfin, diverses améliorations de l'appareillage sont envisagées.

1-1 - Le plutonium

Pu - Nombre atomique Z = 94.

²³⁸U + n -----

A la suite de sa découverte, des recherches très poussées sur les propriétés nucléaires et chimiques de cet élément ont permis une connaissance approfondie de ce nuclide.

On connait une vingtaine d'isotopes du plutonium, tous radioactifs, dont la masse s'étend de 232 a 255. Ils sont tous obtenus artificiellement.

Parmi tous les isotopes de l'élément, c'est le plutonium 239 qui a acquis une importance exceptionnelle par suite de son utilisation possible sur une grande échelle à des fins pacifiques et surtout militaires. C'est sur cet isotope qu'ont été principalement étudiées les propriétés physico-chimiques de l'élément.

Emission α du plutonium 239

Les rayons à émis par le ²³⁹Pu présentent le phénomène de "structure fine" en formant six groupes différents par leurs énergies et leurs intensités.

Groupes	intenses	Groupes de faib	les intensités
5,147 MeV	72 %	5,064 MeV	0,037 %
5,134 MeV	16,80 %	4,999 MeV	0,013 %
5,096 MeV	10,70 %	4,917 MeV	0,002 %

+ 238_{Pu}

suivant le modérateur.

I - LE PLUTONIUM ET SA DETECTION

⁸⁹ υ β	-	239 _{Np}	β	239 _{Pu}
	_	2,33 j.		24 390 ans

Les figures 1 et 2 montrent respectivement un spectre α de ²³⁹Pu et un spectre α de ²³⁹Pu

Le ²³⁹Pu est produit dans les réacteurs. Dans ceux fonctionnant à l'uranium naturel, le taux de conversion est de 0,65 pour les réacteurs modérés à l'eau lourde et de 0,75 pour les réacteurs modérés au graphite. En d'autres termes, la consommation de 1,2 g de ²³⁵U conduit à la formation de 0,8 à 0,9 g de ²³⁹Pu



4

បា



Figure 1.

;



En France, actuellement, des quantités de plus en plus grandes de plutonium sont annuellement traitées. A côté de l'utilisation militaire du ²³⁹Pu, son emploi industriel se développe notamment comme combustible dans les surgénérateurs. Aussi, le nombre de personnes appelées à travailler sur cet élément va croissant.

1-2 - Les risques radioactifs

Les risques radioactifs présentés par le plutonium peuvent prendre plusieurs formes :

- contamination externe
- contamination interne
- accident de criticité.

C'est surtout le risque de contamination interne qui représente le plus souvent un danger radioactif. Parmi les formes de contaminations internes, celles produites par inhalation sont les plus importantes. Nous examinons toutes les formes de risques radioactifs. Nous insistons plus particulièrement sur les contaminations au niveau du poumon qui sont liées à notre problème.

Contamination externe

Les α ont un parcours dans les tissus trop faible (environ 40 μ) pour traverser la couche cornée de la peau lorsqu'il y a contamination. L'irradiation due à une contamination externe est minime. Les émissions X et γ associées à la désintégration α du plutonium sont trop faibles en énergie et en quantité pour provoquer une irradiation externe importante (10).

Contamination interne (11)

Le tableau 1 schématise la destinée du plutonium (11) introduit dans l'organisme. Il permet de saisir le mécanisme du métabolisme de l'élément, c'est-à-dire ses voies d'absorption, ses localisations et son élimination. Il permet de distinguer les différents modes d'introduction du plutonium dans l'organisme et son passage dans le milieu intérieur.

Les "organes critiques", c'est-à-dire ceux qui subissent le plus grand dommage peuvent être le poumon, l'os ou le foie selon le mode de contamination et la forme physicochimique du plutonium.

Accident de criticité

Ce risque est inhérent aux propriétés fissiles du ²³⁹Pu. Le développement de la réaction en chaîne dans certaines conditions peut provoquer des accidents mortels d'irradiations aiguës (neutrons + gammas). Il s'agit là d'un danger grave mais facile à éviter.

Introduction du plutonium dans l'organisme (12 - 13)

Il y a trois modes d'introduction possibles :

- a) ingestion
- b) absorption cutanée
- c) inhalation.

Poumon Blessure Tube digestif

a) Ingestion

Une très faible partie pénètre jusqu'au milieu intérieur.

Au cours d'expériences d'administration répétées de petites quantités de plutonium sous forme de diverses combinaisons chimiques par voie orale à des rats, ou d'administration orale importante à des porcs, la fraction réellement absorbée a été de l'ordre de 3.10⁻⁵. Le plutonium non absorbé s'élimine avec les résidus de la digestion dans les 26 à 36 heures suivantes.

b) Absorption cutanée

1 - Peau intacte

La peau constitue une excellente barrière contre la pénétration du plutonium. L'expérimentation sur le rat a permis de déterminer ce taux de pénétration (14). En cinq jours, il varie de 0,3 % en solution nitrique 0,1 N, à 2 % en solution 10 N. Chez l'homme, pour une solution de $Pu(NO_3)^4$ contenant 10 microgrammes de plutonium appliquée 8 heures sur la paume des mains, LANGHAM (15) a noté un taux d'absorption d'environ 2.10⁻⁶ par heure.

2 - Peau lésée

Le plutonium peut être introduit à l'occasion d'une blessure. Des quantités de l'ordre du microgramme de PuO₂ ont été appliquées sur la peau fraichement abrasée de lapins. La moitié était éliminée par lava-

6





Une très faible partie du plutonium ingéré franchit les muqueuses du tractus gastro-intestinal et

ge, le reste incorporé à la croûte formée, se détachait avec celle-ci lors de sa chute. Des particules métalliques implantées par voie sous cutanée à des lapins furent rapidement oxydées mais restèrent localisées dans la région de l'implant, le taux d'absorption variant de 0,09 à 1,2 % de la dose implantée (15).

Dans une autre expérience, 24 à 30 % du plutonium sous forme de Pu³⁺ et PuO₂⁺⁺ injectés par voie intramusculaire sont résorbés 4 jours après l'injection.

La nature chimique du plutonium influe nettement sur son taux d'absorption.

c) Inhalation

Le problème de l'absorption pulmonaire, de la rétention et de l'élimination des particules inhalées est très complexe. Les divers facteurs en jeu influent les uns sur les autres : taille des particules inhalées, solubilité, densité, ventilation de l'individu, etc...

D'autre part, au pH de l'être vivant (7,35 à 7,45) même les formes solubles tendent à former des colloïdes pouvant donner eux-mêmes des microagrégats insolubles. LANGHAM (15) se basant sur des expériences animales dans lesquelles il faisait respirer un aérosol de plutonium, donne les chiffres suivants :

- Particules exhalées sans dépôt	25 %
- Particules déposées sur l'arbre	
bronchique et éliminées par le	
mucus.	50 %

Sur les 25 % déposés dans les sacs alvéolaires, environ 10 % passent dans le torrent circulatoire et sont déposés en majeure partie dans les organes critiques. Les 15 % des particules restantes sont soit phagocytés, soit éliminés par le mucus bronchique.

Des études plus récentes exécutées par BAIR et Coll. (13) sur des chiens de race beagle avec des aérosols de PuO₂ de diverses tailles et de Pu(NO₃)4 ont donné les résultats consignés dans le tableau n° 2.

Ces résultats montrent l'influence de la nature chimique et de la taille des particules sur l'absorption au niveau des muqueuses pulmonaires.

Il reste du plutonium au niveau du poumon qui, de ce fait, peut devenir l'organe critique.

Normes professionnelles

Quantité maximale admissible (Q.M.A)

Celle-ci représente une quantité de radionuclide telle que, maintenue dans l'organisme humain adulte pendant toute sa vie, elle n'entraîne pour celui-ci aucun dommage appréciable à aucun moment de son existence. Il existe donc, par définition, une marge importante de sécurité entre Q.M.A. et dose toxique.

Le radium 226 est le seul élément dont les effets à longs termes aient été observé chez l'homme (1). C'est un alcalino-terreux ayant une affinité pour le squelette. Le plutonium possède les mêmes caractéristiques: ostéotropie, émission α . Cette similitude de propriétés métaboliques et radioactives autorise la comparaison des effets toxiques du plutonium à ceux du radium. Pour un même effet pathologique en un temps déterminé, le rapport toxicité ²³⁹Pu/²²⁶Ra s'exprime par une unité physique de dose absorbée : le rad. Le rad correspond à l'absorption de 100 ergs par gramme de matière (1). Sur cette base, le rapport toxicité ²³⁹Pu/²²⁶Ra a été

_	
	Part
	Organe étudié
ſ	Poumon
	Autres organes
	Elimination fécale
-	
	Particules d
	Organe étudié
ſ	Poumon
	Autres tissus
•	<u>.</u>
	Organe étudi
	Poumon
	Foie
	Squelette
	Elimination urinair
1	

8

% de la quantité initialement
50
20
30

de Pu O ² dont le diam	le Pu O ² dont le diamètre est compris entre 2 et 7 μ					
é	% de la quantité fixée					
	> 90 5					

Aérosol de nitra	ate de plutonium	
lié	% de la quantité fixée	
	60	
	15	•
	15	
;	9	
ire	1	

TABLEAU · 2

trouvé égal à 5 chez le chien (14). De ce fait, on considère qu'à dose absorbée égale, le ²³⁹Pu est 5 fois plus toxique que le ²²⁶Ra pour l'homme. Cela est expliqué par une localisation moins diffuse du plutonium.

D'autre part, pour une même activité, le rayonnement α émis par le plutonium délivre une dose en rad deux fois moindre que celle du radium (que l'on associe à 30 % de ses descendants). Nous avons vu que le plutonium est considéré comme 5 fois plus nocif en raison de sa répartition moins homogène dans l'organisme ; cela nous amène à définir la Q.M.A. du ²³⁹Pu par rapport à celle du ²²⁶Ra – qui est fixée à 0,1 µCi par l'I.C.R.P. (1) – : $\frac{0.1 \,\mu\text{Ci}}{2.5} = 0,04 \,\mu\text{Ci}$ – le squelette étant considéré comme l'organe critique.

La Q.M.A. pour les poumons est fixée – pour le 239 Pu insoluble – à 0,016 µCi (1).

Le tableau 3 donne les différentes Q.M.A. pour le corps humain (1).

- La détection

Méthodes directes

Elles concernent les mesures faites sur l'individu par la mesure des raies XL associées à l'émission α du plutonium (paragraphe 1-1).

Dans le cas de contamination par blessure, la détection par cette émission X est particulièrement bien adaptée.

Le détecteur à scintillation équipé d'un petit cristal Nal(TI) de 1 mm d'épaisseur et de 3 cm de diamètre est d'un emploi aisé. L'efficacité de détection est supérieure à 90 %. La limite de détection varie suivant la profondeur de la contamination entre 10^{-4} et $10^{-3} \mu$ Ci.

Méthodes indirectes

Elles comprennent les mesures de plutonium dans les excréta ou les milieux biologiques. Ce sont les méthodes généralement employées à l'heure actuelle pour évaluer la charge corporelle (20).

La détermination analytique de très faibles activités de radioélément au sein d'une quantité très importante de matière étrangère nécessite trois grandes étapes (16) ;

- concentration du radioélément
- séparation
- mesure de la radioactivité.

Concentration du radioélément

En milieu liquide, il existe trois méthodes qui sont : l'évaporation, la coprécipitation du radioélément à l'aide d'un entraineur et l'extraction par solvant. En général, une combinaison de ces divers procédés est utilisée.

	Jrgane de référence	Dose maximum admissible	Pour 40	Concentratio Concentratio	n maximum admissil Pour 168	ble 1 h/sem.
			СМА еаu µc/cc	CMA air µc/cm ³	СМА еаu µc/cc	CMA air µc/cm ³
	Os	0,04	10 ⁻⁴	2.10 ⁻¹²	5.10 ⁻⁵	6.10 ⁻¹³
	Foie	0,4	5.10 ⁻⁴	7.10 ⁻¹²	2.10 ⁻⁴	2.10 ¹²
	Rein	0,5	7.10 ⁻⁴	9.10 12	2.10 ⁻⁴	3.10 ⁻¹²
0	3.1 Gros ntestin nférieur		8.10 ⁻⁴	2.10 ⁻⁷	3.10 ⁴	6.10 ⁻⁸
	Fout le Corps	0,4	10 ⁻³	10-11	3.10 ⁻⁴	5.10 ⁻¹²
	oumon		4	4.10-11		10-11
0	3.1 Gros ntestin nférieur		8.10 ⁻⁴	2.10 ⁷	2.10 ⁻⁴	5.10 ⁻⁸

TABLEAU - 3

En milieu solide, il faut au préalable faire une destruction par divers oxydants ou une minéralisation au four ; cette dernière est utilisable si le radioélément n'est pas volatil. Elle est applicable au plutonium La matière minéralisée est ensuite mise en solution.

Séparation

Pour pouvoir mesurer l'émission α du plutonium 239, il est nécessaire de préparer un échantillon final de masse très petite. La séparation s'effectue par des coprécipitations successives, des extractions par solvants spécifiques avec variation de pH ou de degré d'oxydation, de purification sur résines échangeuses d'ions ou par dépôt électrolytique.

Mesure

L'analyse se termine par une mesure de la radioactivité. Les comptages α se font à l'aide de scintillateurs au sulfure de zinc activés à l'argent associés à des photomultiplicateurs. Une électronique appropriée permet de chiffrer le nombre d'émissions α par unité de temps.

.

Les autoradiographies sont un autre moyen de détecter les particules α . La source est mise au contact de plaques sensibles. Après développement de ces plaques, les traces provoquées par les particules α sont dénombrées au microscope.

Le tableau 4 récapitule les principales techniques de séparation chimique du plutonium (16)

En général, le temps minimum nécessaire à ces trois opérations est supérieur à 2 jours. Ce temps est valable pour toutes les techniques proposées (admis par des laboratoires – DPS Fontenay-aux-Roses).

I - 3 - La mesure directe du plutonium

- I 3 a Les rayonnements détectés
- Le ²³⁹Pu

Dans le cas de contamination par blessure profonde, il n'est pas possible de faire une détection a l'aide du rayonnement α émis, celui-ci est entièrement absorbé par les tissus. La détection α n'est valable que dans le cas d'une contamination en surface ; dans les autres cas, on emploiera la méthode utilisant la détection des raies X.

Le schéma de désintégration du ²³⁹Pu se présente approximativement suivant la figure 3, 11 % des désintégrations du ²³⁹Pu conduisent à un état excité de l'uranium 235 à 51 keV. Seulement 0,01 % des atomes atteignant cet état décroissent par émission γ . Le reste décroit par conversion interne suivie dans certains cas d'émission X de l'atome de ²³⁵U due au réarrangement des couches électroniques. Il y a environ 4 % de raies XL par désintégration.

Il y a trois raies XL d'énergie respective 13,6, 17,2 et 20,2 keV avec des intensités relatives 1, 1,2, 0,25 et environ un photon γ de 51 keV pour 26 désintégrations α de 5,096 MeV.

.

- ,

•

Date de l'étude	Date de publication	Auteur	Elément étudié	Méthode de concentration	Méthode de purification	Méthode de comptage	Sensibilité don née par l'auteu
1945	1946	RUSSEL	Urines	Minéralisation et phos- phate de bismuth	Fluorure de lan- thane	Compteur proportionnel	-
1946	1947	LANGHAM	Urines	Minéralisation et éva- poration	F3La et cupferron	Compteur proportionnel	0,3 pCi
1946	1947	RUSSEL	Tissus animaux	Cendres	F3La ou TTA ou cupferron	Compteur proportionnel	-
1946	1956	KOSHLAND	Urines	C ₂ 0 ₄ Ca et La (0H) ₃	F3La	Compteur proportionnel	-
1947	1956	FARABEE	Urines	PO ₄ Bi direct	FgLa	Compteur proportionnel	-
1950	-	SMALES	Urines	Minéralisation et évaporation	Cupferron	Compteur proportionnel	
1951	1955	SCHWENDINAM	Urines	Phosphates alcalino- terreux TTA	Electrolyse	Autoradiographie	0,05 pCi
-	1956	SANDERS	Urines	2 P04Bi	2 F3La	Autoradiographie	0,05 pCi
-	1957	SCHWENDINAM	Urines	Phosphates alcalino- terreux	Electrolyse	Autoradiographie	0,03 pCi
1958	-	GEIGER	Végétaux sols	твр	Evaporation	Autoradiographie	-
1959	-	LEIDT et SANDERS	Urines	Résines anioniques	Electrolyse	Autoradiographie	0,03 pCi
1959	-	HENRY	Urines	Résines anioniques	Evaporation	Scintillateur	0,1 pCi
1960	-	LUDWIEG	Végétaux	Cendres TTA	Evaporation	Compteur proportionnel ou scintillateur	-
1960	1961	WEISS et SCHIPMAN	Urines	Rhodizonate de K, résine anionique	Electrolyse	Scintillateur	-
1962	-	TORIBARA	Os, peau ma- tières fécales	Cendres résines anioniques		Scintillateur liquide	pour les fortes activités
1963	-	8RUENGER	Os, peau ma- tières fécales	Extractions aux a- minés primaires			pour les fortes activités
1963	-	SCHEIDHAUER	Eaux natu- relles	Chimisorption F2Ca TTA	Evaporation ou électrolyse		0,07 pCi
1963	-	HENRY	Matières fécales	Minéralisation	Résines anioniques	Scintillateur	0,1 pCi
			Eaux	Phosphate ALC	Résines anioniques	Scintillateur	0,1 pCi
			Sang	Minéralisation nitro- sulfurique	Fluorure de lan- thane	Scintillateur	0,1 pCi
			1				

TABLEAU - 4

La figure 4 donne l'allure d'un spectre de plutonium 239 obtenu à l'aide d'un compteur proportionnel.

I-3-b- L'américium 241

Plusieurs auteurs (6) préconisent une méthode d'évaluation de la charge corporelle en plutonium par la mesure sur la raie de 60 keV émise par l'américium 241 contenu comme impureté dans le plutonium 239.

Cette méthode a d'ailleurs été utilisée pour déterminer les quantités de ²⁴¹Pu contenues dans le ²³⁹Pu (17).

L'isotope ²⁴¹Pu se désintègre par émission β^{-} pour former de l'américium 241.

L'américium 241 a une période de 458 ans. C'est un émetteur α et γ , notamment par sa raie de 59,6 keV qui a une abondance de 36,6 % par désintégration.

Les quantités d'américium 241 contenues dans le plutonium 239 sont très variables. Des mesures faites sur le plutonium de différentes origines en 1964 ont donné les résultats suivants :

Origine	Quantité après 100 jours	Quantité après 500 jours
Marcoule	6 ppm 20 ppm	22 ppm 70 ppm
Chinon	140 ppm 340 ppm	710 ppm 1 700 ppm

Nous avons mesuré à l'aide d'un détecteur Nal(TI) de 1 mm d'épaisseur dont le rendement est sensiblement le même pour les énergies de 20 keV et 60 keV, des sources de différentes origines. Nous avons simplement vouu déterminer les valeurs d'activité dans les deux bandes d'énergie considérées.

Nous avons obtenu les résultats suivants :

Source	Origine	Coups totaux 17 keV	Coups totaux 60 keV
Dépôt inox	CEN/FAR	141 000	11 000 7,8 %
Verre de montre	C.E.Bruyères-le-Chatel	121 700	2 900 2,3 %
Liquíde	C.E.N. Saclay	23 300	1 400 6 %

.





Cependant, nous verrons plus loin qu'il est indispensable de faire à la fois une mesure dans la bande d'énergie du 239 Pu - 10 à 22,5 keV - et dans la bande de 60 keV.

I - 3 - b - L'absorption dans les tissus

Les rayonnements X d'énergie moyenne de 17 keV sont fortement absorbés par les tissus. En effet, 2 cm de tissus ne laissent passer que 12 % du rayonnement émis.

Les tissus ayant un coëfficient d'absorption de 1 cm2/g – densité égale à 1 g/cm3 – des mesures ont été faites dans l'eau (18) par LEQUAIS (figure 5) avec un cristal Nal(TI) de 1 mm d'épaisseur. Les résultats montrent que pour une énergie de 17 keV, les mesures sont pratiquement impossibles au-delà de 4 cm d'épaisseur de tissu.

J.P. MORUCCI (7) a fait des mesures d'absorption dans le plexiglas en vue de la détection et de la mesure d'une contamination en profondeur par le plutonium. Entre une source de 15 cm de diamètre et de 0,2 μ Ci de ²³⁹Pu et un compteur proportionnel, différentes épaisseurs de plexiglas entre 5 mm et 30 mm ont été interposées pour simuler une absorption. Les courbes sont données figure 6 en coordonnées semi-loga-rithmiques.

On voit que l'allure des spectres est fortement modifiée par les absorbants. Cela présente un avantage dans le cas de mesure sur des blessures. On peut déterminer par la variation de la hauteur relative des différents pics la profondeur de la contamination à condition que celle-ci ne dépasse pas 3 cm de tissus.

I - 3 - c - L'activité naturelle du corps humain

Il existe une radioactivité naturelle du corps humain. Elle est très inférieure aux Q.M.A. La mesure de la radioactivité naturelle est maintenant classique en raison des progrès réalisés dans le domaine des appareillages (19).

Cette radioactivité naturelle est caractérisée par deux principaux radioisotopes : le potassium 40 et le césium 137.

Le potassium 40

C'est le principal émetteur γ naturel. Le potassium naturel émet par suite de l'isotope 40 K en moyenne 3,5 photons γ par seconde et par gramme. La masse du potassium humain étant en moyenne de 140 g, l'activité γ correspondante est d'environ 490 γ émis par seconde. On peut admettre que les 2/3 du rayonnement sortiront effectivement du corps (19).

L'émission β^{--} de 1,32 MeV de cet élément (89 % en moyenne des désintégrations) produit par



Cristal Nal(TI) 1 mm

Source à 7,8 cm du cristal

. Courbe théorique . Courbe expérimentale



rayonnement de freinage un spectre continu γ de faible énergie. Nous verrons plus loin que c'est cette émission β^- de forte énergie, ainsi que le rayonnement de freinage, qui contribue à l'augmentation du mouvement propre dans la bande d'énergie mesurée : 10 keV à 22,5 keV.

Le césium 137

Il entre dans la chaîne alimentaire par l'intermédiaire (19) des produits animaux (viande, lait), et son métabolisme est voisin de celui du potassium. Sa période de radioactivité est de 33 ans mais sa période biologique est de l'ordre de 2 mois.

La quantité de ¹³⁷Cs chez l'individu est très variable suivant les latitudes et la fréquence des essais nucléaires dans l'atmosphère. Elle est d'ailleurs très inférieure aux doses de tolérances admises. Après avoir augmenté régulièrement de 1945 à 1958, elle s'est stabilisée en 1960 à une valeur comprise entre 2.10⁻⁹ curies à 10⁻⁸ curies chez l'adulte. Actuellement, elle se situe en moyenne à 10⁻⁹ curies^{*}. La Q.M.A. pour le corps est de 3.16⁻⁵ curies.

Le césium 137 se désintègre par émission β^- pour donner soit directement le 137 Ba (8 % de désintégrations en moyenne – β^- de 1,17 MeV), soit du 137 Ba dans un état excité (92 % des désintégrations – $\beta^$ de 0,51 MeV). Le 137 Ba, de période de 2,6 minutes se désexcite soit par conversion interne (K + L + M : 11,8 % – raie K à 30 keV), soit par émission γ à 662 keV.

C'est l'émission β^{-} et la raie XK de 30 keV que nous examinerons plus loin au cours de l'étude du mouvement propre humain dans la bande d'énergie comprise entre 10 et 22,5 keV.

Allure d'un spectre γ d'un "homme normal" (19)

La figure 7 donne, à titre d'exemple, le spectre obtenu avec un cristal Nal(Tl) de grand diamètre $(\phi \ 20 \text{ cm}, \text{hauteur } 10 \text{ cm})$ placé au-dessus de l'abdomen. Les pics photoélectriques du potassium et du césium apparaissent nettement.

* Chiffres donnés par le DPS - CEN/FAR.





Spectre gamma type de l'homme normal. Mouvement propre déduit, comptage en 1 000 secondec. Mesure avec un détecteur unique position assise.

Figure 7.

II-- 1 - Les différents types d'appareillages

La mesure directe du plutonium peut être faite à l'aide de différents types de détecteurs. Les plus répandus sont les détecteurs à scintillations et les compteurs proportionnels. Nous allons comparer les propriétés de ces détecteurs et dégager les raisons qui ont motivé notre choix du compteur proportionnel.

Détecteur à scintillation

Les cristaux scintillateurs sont constitués généralement par du jodure de sodium activé au thallium((Nal(Ti)). Le rôle du cristal est d'assurer la conversion en quanta de lumière de l'énergie des particules incidentes. Dans le domaine d'énergie qui nous intéresse (E < 25 keV) l'absorption des photons X par le cristal scintillateur se fait uniquement par effet photoélectrique. Les cristaux sont choisis de faible épaisseur de façon à obtenir le meilleur rapport signal sur bruit. Avec une épaisseur de 1 à 5 mm, les rendements de détection sont supérieurs à 90 % pour les énergies allant de 10 à 100 keV. Le cristal est associé à un photomultiplicateur chargé de transformer en impulsions de courant l'impulsion lumineuse créée dans le cristal.

Le plus répandu est constitué par un cristal de 30 mm de diamètre sur 1 à 3 mm d'épaisseur avec une fenêtre en beryllium de 0,1 mm d'épaisseur, et d'un photomultiplicateur à faible bruit XP 1010 Dario. Le mouvement propre est de 1 à 3 coups par minute, suivant l'épaisseur du cristal, dans une protection de 10 cm d'épaisseur de plomb. La surface utile de ce détecteur est trop petite pour la mesure directe sur le poumon.

Nous avons peu de renseignements sur ces nouveaux cristaux, leur fabrication étant trop récente. Cependant, en ce qui concerne le mouvement propre, si l'on se base sur celui des cristaux de 30 mm - environ 3 à 4 coups minute pour 3 mm d'épaisseur - on peut en faire l'estimation par comparaison entre leur surface pour une même épaisseur, cela donne environ 150 coups par minute pour un cristal de 3 mm d'épaisseur sur ϕ 200 mm, dans une protection de 10 cm de plomb.

Ces valeurs de mouvement propre sont nettement supérieures à celles d'un compteur proportionnel. Aussi, ces nouveaux cristaux ne nous paraissent pas s'appliquer à la mesure de la Q.M.A. en plutonium au niveau du poumon. En revanche, leur efficacité supérieure au compteur proportionnel est intéressante pour la mesure de certaines énergies par exemple la raie de 60 keV de l'américium 241.

Les compteurs proportionnels

Les compteurs proportionnels sont des détecteurs particulièrement bien adaptés à la spectrométrie des rayonnements y de faible énergie ou de rayons X.

20

II - LE CHOIX DE L'APPAREILLAGE

Il existe différents types de détecteurs à scintillations pour rayonnements X (D.S.R.X.) (18).

Récemment, la maison Quartz et Silice a réalisé des cristaux à grande surface de détection :

- "Scintibloc pour rayons X", type 203 SB 5 \u03c6 200 mm, \u00e9paisseur 5 mm.

- "Scintiflex pour rayons X" composé d'un cristal INa(TI) de 3 à 5 mm d'épaisseur. ϕ 200 mm, monté sur un monocristal INa non activé (ϕ 200 mm x 70 mm) et de 4 photomultiplicateursfenêtre d'entrée en beryllium de 1 mm d'épaisseur.

La réalisation de compteurs proportionnels à grande surface de fenêtre permet l'augmentation du rapport signal sur bruit pour deux raisons :

- Pour une même activité de source, le rapport signal sur bruit est augmenté dans le rapport des surfaces.
- Le volume utile du détecteur est considérablement augmenté étant donné que tout le volume du gaz est intéressé par la détection du rayonnement, à condition que le détecteur ait une bonne uniformité de réponse pour tout le volume utilisé. Ainsi, le volume utile de détection dans lequel des intéractions dues à la source se produisent est très voisin du volume total pouvant donner des impulsions dues à des rayonnements parasites ne passant pas par la fenêtre (fig. 8 et 9).



Bien que les cristaux Nal(TI) présentent une efficacité supérieure à 90 % pour les energies considérées, le nombre de photoélectrons reçus par scintillation est insuffisant pour séparer les différentes raies XL*. Le compteur proportionnel au contraire peut les séparer (figures 10 et 11). Nous avons vu que cette propriété peut être utile pour la mesure sur des blessures contaminées en plutonium. En effet, la modification du spectre due à l'absorption dans les tissus permet dans certains cas d'estimer la profondeur de la contamination.

Mais dans le cas du plutonium dans les poumons, la faible activité mesurée et la grande diffusion à travers le tissu pulmonaire ne permet pas d'obtenir un spectre. Aussi, l'avantage déterminant réside-t-il dans le faible mouvement propre du compteur proportionnel. C'est ce qui nous a incité à le préférer à d'autres détecteurs pour résoudre notre problème.

.

• du ²³⁹Pu

٦

22





<u>d N</u> d E





(La figure 12 montre la contribution d'une source de ¹³⁷Cs (raie de 30 keV) dans la bande du 239Pu mesurée avec un D.S.R.X.)

II - 2 - Les différentes réalisations

Il existe un certain nombre de réalisations destinées à la détection du plutonium in vivo. Parmi celles-ci, nous en avons retenu quatre qui proposent des solutions comparables à celle que nous avons choisie. Nous allons examiner rapidement ces installations et nous citerons les performances annoncées par leurs auteurs (20).

II - 2 - a - RUNDO (Grande-Bretagne) (20)

Cet auteur utilise un compteur proportionnel constitué par un cylindre en "lucite" - 15 cm de

long, diamètre 14 cm - La cathode est constituée par un revêtement d'aluminium et l'anode par un fil central de 25 µ. La fenêtre est en lucite de 1,5 mm d'épaisseur. La surface de détection est de 150 cm2. Les efficacités pour 15 cm de parcours sont de 50 %, 34 % et 21 % pour les raies de 13,6, 17,2 et 20,2 keV pour un mélange d'argon-méthane à la pression atmosphérique. La diminution du bruit de fond est obtenue par un dispositif d'anticoïncidence constitué soit par des compteurs Geiger-Muller, soit par un gros scintillateur plastique. Ce compteur a d'excellentes qualités spectrométriques. Le bruit de fond annoncé est de 2,58 coups minute dans la bande d'énergie de 10 à 22,5 keV. La sensibilité pour une source de plutonium placée à 10 cm de la fenêtre est de 910 coups minute par µCi. La radioactivité naturelle apporte un bruit de fond supplémentaire évalué pour l'homme standard - 145 q de K + 6 mµCi de 137 Cs - de 2 coups par minute. L'auteur précise qu'il n'a pas en-

core fait de mesure au niveau de la Q.M.A.

radioélément à période courte.

II - 2 - b - R. EHRET - H. KIEFFER - R. MAUSHART - G. MOHRLE (Allemagne de l'ouest)

Ces auteurs utilisent trois compteurs à grande surface (450 cm2) à anticoïncidence interne. Le remplissage est assuré par une circulation d'argon-méthane à la pression atmosphérique. Les compteurs sont placés dans une grande chambre blindée. Le mouvement propre annoncé est de l'ordre de 3,5 coups par minute. Ce compteur a de très mauvaises qualités spectrométriques.

Les auteurs ont déterminé les meilleures positions des compteurs par rapport au thorax.

Le fantôme utilisé est un corps masculin de 1,80 m, de 89 kilogrammes, dans lequel ils ont placé des pournons artificiels dans la cage thoracique. Dans chaque lobe pulmonaire a été mis une source de plutonium 239. Le tableau suivant indique les résultats obtenus :

Nous verrons plus loin que cet auteur propose une méthode de calibration basée sur l'absorption de



Figure 12.

Position du compteur	
Milieu poitrine	
Côté poitrine	
Sous l'aisselle	
Côté du dos	
Milieu du dos	

La sensibilité est pour 1 microcutie de ²³⁹Pu dans les deux poumons d'environ 56 cpm avec un bruit de fond de 3 cpm dans le blindage. Au bout de 30 minutes, il serait possible de détecter des quantités de $1,2 \ 10^{-8}$ curie de plutonium.

II - 2 - c - D, RAMDSEN (Grande-Bretagne) (3)

Cet auteur a réalisé un compteur multifil à anticoïncidence interne. Le corps du compteur est en cuivre, la fenêtre en aluminium. Le gaz de remplissage est du xénon plus 10 % de méthane à la pression atmosphérique. Les dimensions en sont : 12 cm x 12 cm x 6,25 cm ; la surface utile est de 60 cm2. Ce compteur a des qualités spectrométriques moyennes. Le mouvement propre de ce compteur à l'intérieur d'un blindage est d'environ 5 coups par minute.

L'étalonnage a été fait à l'aide d'un fantôme simulant un thorax. Des sources de plutonium ont été placées au milieu des poumons. L'auteur annonce qu'en prenant 2 sigma du mouvement propre au bout de 50 minutes de comptage, le fantôme utilisé donne une limite de détection de 0,03 μ Ci, c'est-à-dire environ deux Q.M.A.

C'est un compteur multifil en cuivre à anticoïncidence interne. La fenêtre est en beryllium de 1 mm d'épaisseur et de 19 cm de diamètre. Le gaz de remplissage est du xénon + 10 % de méthane à la pression atmosphérique. La surface utile du compteur est de 250 cm2. Ce compteur a d'excellentes qualités spectrométriques.

II - 2 - e - Choix du compteur MORUCCI

Il est à noter que toutes les réalisations que nous citons ne sont encore que des prototypes de laboratoire. Le compteur S.E.P. est le seul dont nous pouvions disposer. Il s'agit d'ailleurs d'un compteur à la réalisation duquel nous avons collaboré. De ce fait, son choix s'imposait tout naturellement. Il n'en possède pas moins des qualités qui en font un détecteur bien adapté au problème posé.

Taux de comptage	Facteur d'absorption
100	29,5
129	17
98	15
19	154
21	88

11 - 2 - d - Le détecteur MORUCCI (FRANCE - CEN/Saclay) (4)

- sensibilité excellente dans la bande d'énergie du plutonium, comprise entre 10 et 22,5 keV et suffisante dans la bande d'énergie de 50 à 70 keV (raie de 60 keV de l'americium 241)
- excellentes qualités spectrométriques
- homogénéité de réponse du compteur sur tout le diamétre utile.

Les performances de ce compteur au point de vue bruit de fond sont supérieures, compte tenu de la grande efficacité de détection, aux réalisations citées.

Si l'on compare les rendements exprimés en coups par minute de trois des compteurs cités, pour une source de 1 μ Ci de ²³⁹Pu placée à 10 cm de la fenêtre, nous avons selon les auteurs :

> RUNDO 950 cpm MAUSHART 1 550 cpm MORUCCI 6 000 cpm.

III - 1 - Description du compteur MORUCCI

par le ²³⁹Pu (2).

C'est un compteur multifil en cuivre à anticoincidence interne. La fenêtre est en beryllium de 1 mm d'épaisseur et de 19 cm de diamètre. La coupe schématique du compteur est donnée figure 13,

- diamètre utile : 19 cm
- pression

L'anode est constituée par une couronne en cuivre sur laquelle sont tendus des fils de molybdène recuit, dont le diamètre – 25 μ – est garanti à 2 % près ; distants de 32 mm. De part et d'autre de cette grille de comptage, deux autres couronnes équipées de fils de 150 μ tous les 5 mm constituent la cathode et les fils de masse sont perpendiculaires aux fils H.T. L'écart entre les fils de masse et les fils H.T. est de 17 mm.

L'inconvénient d'un tel dispositif est ce qu'on appelle "l'effet de bord", c'est-à-dire la distorsion du champ sur les supports des grilles de comptage. On constate en effet que, dans un compteur multifil, l'amplitude de l'impulsion électrique donnée par une source X ou γ collimatée décroit du centre au bord le long d'un fil ou transversalement au fil.

Sachant que dans un compteur cylindrique, pour une tension donnée, on augmente la hauteur de l'impulsion en diminuant le diamètre de cathode, "l'effet de bord" a été corrigé en augmentant l'épaisseur de la couronne de masse, pour une distance entre les réseaux de fils de masse et de H.T. constante.

Les compteurs actuellement connus ont un nombre de fils haute tension important, par exemple un écartement de 1 cm pour un diamètre de 20 cm et des fils de 50 μ . En agissant sur l'effet correcteur, il a été possible de diminuer d'un facteur 3 le nombre de fils sans perte de rendement ni d'uniformité de réponse. La haute tension pour une même amplitude de signal est ainsi diminuée de 25 % et atteint une valeur proche de celle qu'on obtiendrait avec un seul fil.

Anticoïncidence

La superposition de deux compteurs dans la même enceinte est particulièrement bien adaptée à la réduction du bruit de fond, par anticoïncidence. Quand un rayonnement cosmigue a créé une intéraction dans les deux compteurs simultanément, l'impulsion du compteur supérieur bloque le sélecteur transistorisé et l'impulsion du "compteur mesure" n'est pas analysée.

III - L'APPAREILLAGE UTILISE

Ce compteur a été spécialement réalisé en vue de pouvoir déceler une contamination pulmonaire

- nature du gaz : xénon-méthane (90 % - 10 %)

: atmosphérique



Le compteur que nous utilisons est muni d'un four à calcium destiné à l'absorption de l'oxygène dégazé par les matériaux du compteur.

Principe de la détection

Les détecteurs utilisant l'ionisation dans les gaz comprennent généralement une coque cylindrique avec un fil central. La coque constitue la cathode et le fil central l'anode. Cette enceinte est généralement étanche et remplie d'un gaz rare et d'une vapeur polyatomique. Une différence de potentiel V est appliquée entre les deux électrodes.

Soit un électron créé en un point donné du volume du cylindre par un processus d'ionisation primaire. Cet électron, sous l'action du champ dû à la tension appliquée V va se déplacer vers l'anode. Au voisinage de celle-ci, il va acquérir une énergie suffisante pour ioniser les atomes du gaz. Il y a multiplication des charges. On appelle "coëfficient de multiplication" le rapport entre le nombre de charges collectées et le nombre de charges directement créées par l'intéraction primaire.

Lorsque l'on applique une tension V entre deux cylindres conducteurs coaxiaux, le champ électrique à la distance r de l'axe est donné par :

 $E(r) = \frac{V}{r} = \frac{1}{Log \frac{b}{a}}$

a : rayon du fil central b : rayon de la coque V : tension appliquée.

. .

Pour obtenir une multiplication suffisante, il est nècessaire d'agir sur la géométrie du dispositif essentiellement en diminuant le rayon a de l'anode qui est couramment de 15 à 50 µm. Dans ces conditions, le rayon r peut prendre des valeurs très petites, au voisinage immédiat de l'anode où se trouve une zone à champ très élevé conduisant à une multiplication notable.

La région du volume sensible dans laquelle se produit la multiplication est un cylindre ayant l'anode pour axe et un rayon de l'ordre de dix fois celui de l'anode. Son volume est donc très faible devant le volume du compteur et le nombre de paires d'ions produites dans cette région par la particule incidente est négli geable. Le coëfficient de multiplication est donc le même quelle que soit l'orientation de la trajectoire de la particule ionisante incidente puisque tous les électrons parcourent la même distance dans la région de multiplication. Toute l'ionisation produite au cours de la multiplication se trouvant à l'intérieur du cylindre défini autour de l'anode, la plus grande partie du signal créé est due au mouvement des ions vers la cathode.

.



Une impulsion issue de N électrons primaires avec un facteur de multiplication A amène sur le fil d'anode une charge Q = ANe.

e = charge de l'électron.

Il en résulte une variation de potentiel sur le fil :

$$dV = \frac{ANe}{C}$$

C = capacité du fil et des portions de circuits associés.

Cette variation de potentiel a une amplitude totale proportionnelle à l'ionisation initiale de sorte que l'appareil se comporte comme un amplificateur linéaire.

Formation de l'impulsion

La collection des électrons issus de la multiplication est très rapide. Elle ne contribue que pour 1/100 à la montée de l'impulsion. Les 99/100 de l'impulsion sont dus au déplacement des ions qui s'éloignent d'abord rapidement de la région proche de l'anode (2 µs) et gagnent la cathode au bout de 1 milliseconde. La forme de l'impulsion est représentée par la figure 14.



Dans un processus d'ionisation primaire, si la trajectoire est parallèle au fil d'anode, tous les électrons émis pénètrent en même temps dans le champ critique (multiplication) et l'impulsion induite a la même forme que celle d'un électron isolé. Si la trajectoire est inclinée sur l'anode, les électrons primaires n'entrent plus simultanément dans le champ critique et le temps de montée de l'impulsion est augmenté.

Si la trajectoire est petite, les impulsions ont des temps de montée sensiblement égaux, quel que soit leur point d'origine ; une trajectoire longue au contraire affecte le temps de montée.

Ainsi les impulsions dues aux intéractions des rayons cosmiques ont un temps de montée plus long que celles dues aux intéractions des rayons X.

Nous avons photographié sur un oscilloscope les impulsions délivrées à la sortie du compteur par les raies X d'une source de ¹⁰⁹Cd (énergie de 22,5 keV) et les impulsions dues aux rayons cosmiques en l'ab-

sence de source (figures 15 et 16).



Figure 15.

109 Cd. Temps de balayage : 0,5 µs/carreau.

4 μ s pour les rayons cosmiques.

D'autre part, pour éviter des recombinaisons, le gaz du compteur doit être purifié. En effet, la présence d'oxygène entraîne la fixation des électrons diminuant ainsi le facteur d'amplification. Cette purification est obtenue en faisant passer le gaz de remplissage dans un four à calcium.

L'explication du fonctionnement d'un compteur cylindrique s'applique également au compteur multifil que nous utilisons en raison de l'écartement des fils d'anode.

Efficacité de détection

La sensibilité aux rayons X de différentes énergies est déterminée par plusieure facteurs :

- facteur de transmission de la fenêtre

32



Figure 16.

Rayons cosmiques Temps de balayage : $0.5 \ \mu s/carreau$.

Nous notons un temps de montée de 2 μ s pour la source de 109Cd et un temps de montée de

La connaissance de ces paramètres nous permet l'adaptation des circuits électroniques associés.

- absorption du rayonnement dans le gaz de remplissage.

Transmission de la fenêtre

La courbe de la figure 17 donne le facteur de transmission d'une fenêtre en beryllium de 1 mm d'épaisseur. Il est de 95 % pour les énergies supérieures à 10 keV. La fenêtre n'a pratiquement aucune influence sur l'efficacité du compteur dans la bande d'énergie utile (10 - 22,5 keV).

Le gaz de remplissage

Il est indispensable qu'une fraction importante du rayonnement X qui a traversé la fenêtre du compteur soit absorbée dans le gaz de remplissage pour que le rendement global de détection soit satisfaisant. Les facteurs déterminant l'absorption d'un rayonnement X de longueur d'onde donnée est le coëfficient d'absorption du gaz exprimé en cm2/g. On a donc une dépendance à la fois du gaz et de sa pression. Le coëfficient d'absorption croit avec le Z de l'élément ce qui justifie l'emploi du xénon.

La figure 18 donne, pour différentes énergies, les courbes d'absorption du xénon sous 1 atmosphère en fonction de l'épaisseur du gaz traversé (7).

Les rendements théoriques pour une épaisseur utile de gaz de 3,4 cm sont pour 13,6 keV, 17,2 keV et 20,2 keV respectivement de 84 %, 62 % et 46 % sous une atmosphère de xénon pur.

Le compteur que nous utilisons est rempli de 90 % de xénon plus 10 % de méthane sous une pression sensiblement égale à 800 mm de Hg.

Nous avons tracé la courbe d'efficacité expérimentale de la figure 19 à partir des résultats suivants :

Sources	Energie keV	Efficacité en %	
55 _{Fe}	5,9	50	
239 _{Pu}	13,6 17,2 20,2	70 51 38	
109 _{Cd}	22,5	35	
125,	27	21	

Le rendement peut être plus élevé pour des rayonnements traversant obliquement le compteur, le parcours dans le gaz étant dans ce cas supérieur à 3,4 cm. Aussi, nous avons fait nos mesures avec des sources collimatées de manière à ne détecter que les rayonnements arrivant perpendiculairement à la fenêtre du compteur. Les sources ont été étalonnées dans les mêmes conditions à l'aide d'un D.S.R.X.



Figure 18.





III - ? - a - Rôle de l'électronique

L'électronique associée au compteur tient une place importante dans l'ensemble de l'appareillage. La mesure de faibles activités impose en effet des réglages électroniques optima si l'on veut tirer le meilleur parti des performances du compteur : bruit de fond, efficacité, stabilité et résolution.

L'électronique associée a différentes fonctions :

- fournir la T.H.T. du compteur
- assurer l'amplification et la mise en forme des impulsions
- assurer l'élimination par anticoïncidences des rayonnements cosmigues
- stocker les informations reçues et les restituer (machine imprimante, enregistreur analogique).

111 · 2 · b · Description du matériel

standard C.E.A.

Elle comprend :

- deux amplificateurs TAP 10 000/2 ELA
- un tiroir THT 4 ELA
- un tiroir TU 2 ELA
- deux tiroirs retard TRS 1 SAIP
- une alimentation rack ALS 400 ELA
- un sélecteur 400 canaux RCL.

Le sélecteur d'amplitude 400 canaux R.C.L. stocke dans sa mémoire les impulsions non anticoïncidées et permet de visualiser le spectre d'amplitude sur un oscilloscope ou de l'enregistrer sur une machine imprimante,

Un schéma synoptique montre la disposition des différents éléments (figure 20).



Le matériel est constitué par l'assemblage et l'adaptation de différents éléments électroniques

```
- deux préamplificateurs CRC, type AMP 149
```

Figure 20.

Diagramme schématique

a) Préamplificateur

Il sert à la fois d'amplificateur (gain 20) et d'adaptateur d'impédance.

b) Amplificateur TAP 10 000

Il reçoit les impulsions du préamplificateur. Il assure l'amplification et la mise en forme (intégration - différentiation) des impulsions. Les impulsions sont envoyées soit vers le sélecteur d'amplitude, à travers les tiroirs retard, soit vers le circuit de commande de l'anticoïncidence.

c) Tiroir de mise en forme

Ce tiroir reçoit les impulsions de l'amplificateur d'anticoïncidence. Il délivre le signal de blocage exigé par le sélecteur d'amplitude.

d) Tiroir retard

Il a pour but d'introduire un retard convenable, afin d'assurer le fonctionnement correct du circuit d'anticoïncidence.

e) Tiroir T.H.T.

Il fournit la très haute tension (1400 - 1800 volts) nécessaire au compteur proportionnel.

Le choix des paramètres de l'électronique associée est directement lié au problème de la diminution du mouvement propre. Aussi, ce sujet sera examiné dans le chapitre consacré à l'étude du bruit de fond de Finstallation.

Blindage

Le blindage est constitué par une enceinte en plomb de 10 cm d'épaisseur. Les dimensions intérieures sont 100 cm x 100 cm de base, 200 cm de hauteur. L'intérieur est tapissé sur toutes les faces d'acier "inox" de 1 mm d'épaisseur. Le compteur est fixé sur un pied qui permet de le déplacer. Un système de ventilation avec filtre élimine en partie les poussières radioactives. La fermeture de la porte est commandée électri-'quement.

Le choix de cette enceinte blindée a été déterminé par des considérations de place et de prix de revient. Une enceinte beaucoup plus spacieuse sera indispensable pour les examens in vivo à venir.

L'efficacité de la protection sera examinée au cours du chapitre consacré au bruit de fond.

111 - 2 - c - Réglage de l'électronique

Les différents réglages comprennent :

- le choix de la haute tension appliquée au compteur

- la détermination des constantes de temps de mise en forme des impulsions

- le réglage du cicuit d'anticoïncidence.

Choix de la haute tension appliquée

associée.

phère, de l'ordre de 1 700 Volts.

Pour une tension trop basse, l'impulsion délivrée sera au niveau du bruit d'entrée de l'électronique. Ce dernier est en général peu génant, Nous avons mesuré sur notre installation un bruit inférieur à 0,5 millivolt crète-à-crète ramené à l'entrée du préamplificateur.

tees.

Nous avons photographié sur l'oscilloscope les impulsions délivrées par le compteur avec une source de ¹⁰⁹Cd pour trois valeurs de tension différentes :

- 1 550 volts
- 1700 volts
- 2 000 volts.

valeurs de haute tension :

- 1 550 volts 19 % - 1 700 volts 15 %
- 2 000 volts 26 %

1 700 volts.

Il est à noter également que la source de haute tension doit être très bien "régulée" et filtrée (c'est le cas en général des générateurs haute tension en service au C.E.A.)

Nous allons examiner ces différents réglages :

Il y a un compromis à trouver entre l'amplification interne du compteur et celle de l'électronique

Dans le cas du compteur S.E.P., la haute tension appliquée est, pour du xénon sous une atmos-

Dans le cas d'une tension trop élevée, la linéarité et la résolution du compteur se trouvent affec-

Ces photographies (figures 21, 22, 23) montrent :

- à 1 550 volts, le bruit est très important par rapport au signal,

- à 1 700 volts le rapport signal/bruit est augmenté

à 2 000 volts, le rapport signal/bruit est encore amélioré.

Nous avons d'autre part, mesuré les résolutions obtenues sur le ¹⁰⁹Cd en fonction de ces trois

De ces résultats, nous avons tiré la valeur moyenne de haute tension à appliquer au compteur :







Figure 22. 1 750 Volts.



Figure 23. 2 000 Volts.

'n

Choix des constantes de temps de mise en forme

Nous avons vu au paragraphe III-1-b que pour une même énergie dépensée dans le compteur, les particules chargées à haute énergie délivrent des impulsions à temps de montée plus long (4 µs) que celui des impulsions dues aux rayons X (1 à 2 μ s). Dans la voie anticoïncidence, il y a avantage à faciliter par une large bande passante la transmission des impulsions à temps de montée long de façon à déclencher le signal de blocage pour toutes les intéractions produites dans le compteur de garde. Nous aurons l'occasion de le vérifier dans l'étude du bruit de fond. Au contraire, dans la voie mesure, la bande passante peut être plus étroite puisque seules les intéractions dues aux rayons X sont souhaitées être analysées. Comme les constantes de temps nous sont imposées par les impulsions délivrées par le compteur, elles sont choisies de façon à conserver la valeur maximum de l'amplitude du signal que l'on veut transmettre.

Nous avons choisi pour la voie anticoïncidence :

- Intégration
 - Différentiation : 10 μs,

et pour la voie mesure :

- Intégration
- Différentiation : 3 μs

En ce qui concerne la voie mesure, il faut s'assurer que l'impulsion "mise en forme" peut être analysée correctement par le sélecteur d'amplitude associé (le sélecteur R.C.L. que nous utilisons accepte des temps de montée de $0,2 > 10 > \mu$ s).



: 10 μs

: 3 μs

La figure 20 montre le circuit équivalent pour chaque voie :

Les photographies des figures 25 et 26 montrent les impulsions après mise en forme.





Figure 25. Voie mesure, source 109 Cd. Temps de balayage : 2 μ s/carreau.

L'anticoïncidence

Nous avons vu que le compteur MORUCCI comprend un compteur de garde et un compteur de mesure placés dans la même enceinte. Quand une particule chargée à grande énergie traverse les deux compteurs en y produisant une intéraction, les deux impulsions créées sont annulées électroniquement dans les circuits d'anticoïncidence.

Fonctionnement

L'impulsion après amplification dans la voie anticoïncidence est envoyée dans le tiroir chargé de créer le signal de blocage - "créneau" positif d'une durée de 400 µs - qui bloque le sélecteur pendant toute sa durée. C'est-à-dire que pendant le temps du "blocage" aucune impulsion ne peut être analysée ; l'impulsion de la voie mesure est donc annulée.

Pour que ce dispositif fonctionne correctement il est nécessaire de retarder le signal de la voie mesure par rapport au signal de blocage. En effet, en cas d'arrivée simultanée des deux signaux dans le sélecteur, la plage d'incertitude de déclenchement du circuit de blocage de ce dernier risque de laisser analyser l'impulsion à éliminer.

Le retard à introduire dans la voie mesure doit être supérieur au temps de montée de l'impulsion de la voie anticoïncidence auquel il faut ajouter le temps de montée du signal de blocage : 5 μ s + 2 μ s = 7 μ s.

- Le retard choisi égale 8 μs -

Figure 26. Voie anticoïncidence, Temps de balayage : 2 μ s/carreau.



Figure 27. Vole anticoïncidence. Signal positif : Impulsion, Signal négatif : Blocage 2 μs/carreau.

1 - Le déclenchement du signal de blocage dans la voie anticoïncidence.

2 - Le retard introduit dans la voie mesure.

La durée du "créneau" de blocage a été fixée à 400 µs. Ce "temps mort" relativement long n'est pas un inconvénient compte tenu des faibles activités qui seront comptées. En revanche, il a l'avantage d'éviter qu'un "rebondissement" découlant d'une impulsion saturante ne soit compté dans le sélecteur.

III - 3 - Le bruit de fond

III - 3 - a - Origine

Le rayonnement cosmique

Le rayonnement cosmique est une des causes principales du mouvement propre du compteur. Son abondance au niveau de la mer est en moyenne, de un par minute et par centimètre carré. Leur action se fait :

- sur le gaz du compteur
- sur les parois (raies X)
- sur les parois de l'enceinte.

42





Figure 28. Voie mesure Signal 1 : Impulsion, Signal 2 : Impulsion retardée 2 μs/carreau.

Le rayonnement γ

La radioactivité contenue dans les matériaux du bâtiment : radium, potassium, etc...

L'air ambiant contient toujours plus ou moins de radioactivité γ due en général aux émanations de radon qui donne des actions secondaires sur le compteur et les parois de l'enceinte, lesquels émettent un rayonnement X caractéristique.

Le plomb n'est pas exempt de radioactivité β et γ (surtout des γ de 47 keV dus au ²¹⁰Pb).

Les peintures présentent quelquefois une activité non négligeable.

Impuretés contenues dans les matériaux utilisés

Le xénon contient des traces plus ou moins importantes de krypton 85 émetteur β .

Par ailleurs, il faut également se protèger des parasites transmis par le réseau électrique qui peuvent venir de façon inopinée perturber la mesure.

III - 3 - b - Réduction du bruit de fond

Pour améliorer le seuil de sensibilité de l'installation, il est indispensable de réduire dans toute la mesure possible le bruit de fond.

Plusieurs actions sont possibles :

- Efficacité du blindage
- Efficacité de l'anticoïncidence du compteur
- Pureté des matériaux (gaz de remplissage).

Nous allons analyser ces différentes actions,

Efficacité du blindage

Les résultats sont d'autant meilleurs que l'épaisseur de blindage est plus grande. Néanmoins, une épaisseur de 10 cm de plomb suffit à protéger le compteur des variations de la radioactivité extérieure.

Nous avons fait deux séries de mesures pour vérifier l'efficacité de notre protection :

- à l'extérieur du blindage
- à l'intérieur du blindage

Ces mesures ont été faites avec et sans anticoïncidence plus une mesure en "coïncidence" des rayons cosmiques. Le tableau ci-après donne les résultats obtenus en coups par minute pour cent minutes de mesure.

Bandas d'éperaies	Hors blindage			Dans le blindage		
	S.A.C.	A.C.	с	S.A.C.	A.C.	с
4 – 10 keV	77	43	34	35	13	20
10 -– 22 keV	159	43	116	87	12	75
22,5 — 30 keV	116	34	82	56	7	49
4 – 30 keV	351	120	231	177	32	143

S.A.C. Sans coîncidence C En coïncidence

La figure 29 montre le spectre obtenu à l'intérieur et à l'extérieur de la protection.

Efficacité de l'anticoïncidence

Maintenant que sont fixés les différents réglages de l'électronique pour un bon fonctionnement du dispositif d'anticoïncidence, nous allons vérifier son efficacité.

blocage du sélecteur.

Nous savons que la bande d'énergie utile dans la voie mesure est comprise entre 10 et 22,5 keV correspondant aux raies X du plutonium.

Il n'est pas certain que les rayons cosmigues perdent la même énergie dans le compteur de garde et dans le compteur de mesure. Par conséquent, il parait pensable à priori que la voie anticoïncidence couvre une large bande d'énergie.

Nous en avons recherché la confirmation par une mesure de la répartition du bruit de fond du aux rayons cosmigues dans la voie anticoïncidence qui produisent dans le compteur de mesure des intéractions correspondant aux énergies comprises entre 10 et 22,5 keV.

La mesure a été faite ainsi :

- "analyse"

Ainsi ne sont analysés que les signaux en coïncidence ayant perdu une énergie comprise entre 10 et 22,5 keV dans le compteur de mesure.

Nous déterminerons également à partir de quelle énergie il convient de déclencher le signal de

- Les signaux de la voie anticoïncidence sont envoyés dans le sélecteur d'amplitude par l'entrée

· Les signaux de la voie mesure sont envoyés dans le sélecteur par l'intermédiaire d'un circuit de coïncidence, en définissant une "fenêtre" de 10 à 22.5 keV.





Nous voyons que la répartition du spectre va de 4 keV à l'infini d'où la nécessité de déclencher le signal de blocage d'anticoïncidence à partir de 3 keV. La courbe de la figure 31 montre l'efficacité de l'anticoîncidence.

Le tableau ci-après indique le résultat obtenu après réglage du seuil de déclenchement du signal de blocage à 3 keV (en coups par minute).

	3 – 10 keV	. 10 – 22,5 keV	22,5 – 30 keV
S.A.C.	34	87	36
A.C.	20	12	77

.



)	keV	13	±	0,5
2,5	keV	5 3	±	1
)	keV	12	±	0,5
	•			

S.A.C.	:	sans anticoïncidence
A.C.	:	avec anticoïncidence.

La pureté des matériaux

Le gaz de remplissage – Une partie importante du mouvement propre du compteur peut être causée par les traces du krypton radioactif subsistant dans le xénon. Lors des explosions nucléaires, une quantité importante de produits de fission de l'uranium et du plutonium est rejetée dans l'atmosphère. Parmi les produits de fission gazeux, seul le ⁸⁵Kr a une période suffisamment longue (10,3 ans) pour s'accumuler dans l'air. Il présente une activité β^- d'énergie maximum de 0,672 MeV. Par ailleurs, les usines de traitement des combustibles irradiés dans les piles rejettent également du ⁸⁵Kr dans l'air. Au premier janvier 1966, l'activité moyenne d'un litre de krypton était de 25 000 désintégrations par minute (chiffre fourni par le S.E.P. Saclay).

Les impuretés contenues dans le xénon sont constituées en majeure partie par du krypton naturel en raison des difficultés à séparer ces deux gaz. Mais, la fluctuation des quantités de ⁸⁵Kr contenues dans le krypton naturel rend difficile l'établissement d'une relation entre l'activité du ⁸⁵Kr et la pureté du xénon.

Nous avons fait des mesures expérimentales de mouvement propre avec du xénon à différents taux de pureté. Les résultats sont donnés par le tableau suivant : (bande de 10 à 22,5 keV – exprimé en coups par minute).

Pureté du xénon en %	c.p.m. 10 – 22,5 keV
99	271
99,5	33
99,90	16
99,95	12
99,995	12

Ces résultats montrent que si l'on ne connait pas la teneur en ⁸⁵Kr au moment de la préparation du gaz, il est préférable de remplir le compteur avec du xénon ayant un taux de pureté élevé. Actuellement, avec les bouteilles que nous avons testées, la pureté de 99,95 % ne parait pas intervenir dans le bruit de fond.

.

Résultats

Nous avons examiné les paramètres pouvant agir sur le bruit de fond : blindage, anticoïncidence, gaz de remplissage. Cela nous permet de chiffrer le mouvement propre du compteur pour deux positions : horizontale et verticale.

Nous avons obtenu les résultats suivants (coups par minute) :



48

	3 – 10 keV	10 – 22,5 keV	22,5 — 30 keV
Position verticale	21 ± 0,4	15 ± 0,4	11 ± 0,3
Position horizontale	20 ± 0,4	12 ± 0,3	7 ± 0,5

La différence de mouvement propre entre les deux positions horizontales et verticales est due certainement aux rayons cosmiques moins bien "anticoincidés". Il est préférable de faire des mesures avec le compteur en position horizontale.

Les mesures ont été faites avec un écran de cuivre de 0,5 cm d'épaisseur placé devant la fenêtre pour connaitre le mouvement propre du compteur.

Il est à noter que pour les mesures sur l'homme, les mouvements propres devront être faits avec des fantômes inactifs (sujets non contaminés).

La connaissance des caractéristiques physiques de notre installation nous permet d'aborder à present le problème des mesures proprement dites.

problème :

- le thorax artificiel
- la position du compteur

IV - 1 - Définition des conditions de mesure

Les mesures in vitro et in vivo sont faites dans les conditions suivantes :

a) le mouvement propre est fait avec un échantillon "blanc"

b) la plage couverte par le sélecteur peut être comprise entre 3 et 30 keV ou entre 10 et 70 keV. Nous avons défini 4 bandes de mesure :

-	3	keV à 10	k
-	10	keV à 22,5	i k
-	22,5	keV à 30	ķ
	50 á	à 70 keV.	

La première bande n'est pas mentionnée dans les mesures : elle n'apporte aucune indication utile et elle est plus vulnerable aux parasites.

La seconde bande, celle des raies X du plutonium, est la plus importante.

La troisième bande donne une indication sur l'activité naturelle.

La quatrième permet de faire une mesure sur la raie de 60 keV de l'américium 241.

En ce qui concerne les mesures sur le plutonium et l'estimation de l'activité naturelle, nous ne mentionnons que la seconde et la troisième bande d'énergie. Nous parlerons de la quatrième bande d'énergie dans le paragraphe consacré à la contribution de l'américium 241 dans une mesure de contamination.

50

1

IV - LES MESURES IN VITRO

Dans le chapitre consacré aux mesures in vitro seront examinés successivement les divers aspects du

- la définition des conditions de mesure

- l'estimation de l'activité vue par le compteur

- l'activité naturelle du corps humain

- la contribution éventuelle de l'américium 241

- la précision des mesures et le seuil de sensibilité.

keV

keV

keV



Les résultats sont donnés "brut" – mouvement propre plus source – et "net"– mouvement propre déduit – en coups par minute. Lorsque le comptage est suffisamment long, l'erreur due aux fluctuations statistiques devenue négligeable n'est pas mentionnée à moins qu'elle ne présente un intérêt quant à l'expérience elle-même.

52

IV - 2 - Le thorax artificiel

Nous avons vu que les mesures sont rendues difficiles en raison de la grande absorption par les tissus mous, les côtes, le sternum, la colonne vertébrale, etc... Il est délicat d'établir une corrélation entre la réponse de détecteurs externes et la configuration de sources internes. Il faut donc recourir à une méthode semiempirique qui consiste à placer les sources à l'intérieur d'un thorax artificiel dont les caractéristiques d'absorption sont semblables à celles du thorax humain. La réalisation de fantômes anthropomorphes a fait déja l'objet d'études approfondies (2).

Les effets d'absorption et de diffusion (24) sont fonction de la densité électronique (nombre d'électrons par cm3) et du nombre atomique du matériau. L'absorption photoélectrique dans les basses énergies dépend principalement de Z, tandis que la densité électronique détermine l'effet compton aux énergies plus élevées.

Nous avons demandé à la maison "Alderson Research Laboratory Inc." la réalisation d'un fantôme anthropomorphe reproduisant un tronc. Ce fantôme répond aux caractéristiques suivantes :

- \sim matière semblable au point de vue de la transparence (rayons X et γ) à celle des tissus humains,
- cage thoracique de squelette humain enveloppant le poumon artificiel
- poumon artificiel (deux lobes de 500 g) répondant aux mêmes conditions.

Le fantôme se sépare en deux parties permettant ainsi de placer les sources radioactives à l'intérieur des lobes pulmonaires (figures 32, 33).

IV - 3 - La position du compteur

On sait que l'épaisseur du tissu musculaire recouvrant la cage thoracique est très variable. Cette épaisseur peut atteindre 4 à 5 cm sur la poitrine et dans le dos. Elle est en moyenne de 2 cm sous l'aisselle. Les côtes constituent une barrière infranchissable pour les raies X de basse énergie.

L'espace intercostal est égal à la largeur des côtes, ce qui fait que la moitie de la surface vue par le compteur sera masriuée par ces dernières.

Pour déterminer la position la plus favorable du compteur par rapport au thorax, nous avons placé une source liquide de ²³⁹Pu contenue dans un catheter en plexiglas de 1 mm de diamètre, au milieu géométrique du poumon gauche (figure 34). L'activité de la source était de 52 000 pCi. Les mesures ont été faites dans les trois positions différentes : sur la poitrine, sous l'aisselle, sur le dos. Nous avons obtenu les résultats suivants après 50 mn de comptage.



Figure 32. Thorax artificiel



Figure 33. Thorax artificiel - Séparation des deux parties -



Figure 34.

•

Thorax artificiel - Position de la source -

.

	Mouvement propre		Brut		Net	
	10 - 22,5	22,5 - 30	10 – 22,5	22,5 – 30	10 - 22,5	22,5 — 30
Poitrine	13	6	24	6	11	-
Aisselle	-	-	39	-	26	—
Dos	_	_	23	—	10	—

Ces résultats montrent que c'est bien à l'endroit de la moindre épaisseur de tissu musculaire, sous l'aisselle, que le taux de comptage est le plus élevé (figure 35).



1

Figure - 35

Position du compteur par rapport au thorax.

IV - 4 - Estimation de l'activité perçue par le compteur

Au début de ce travail, nous avions fait une estimation théorique de l'activité pouvant être perçue par le compteur SEP en partant de l'hypothèse selon laquelle la majorité des particules inhalées se fixeront sur la surface pulmonaire interne avec une répartition en profondeur de 1 cm.

Prenons les principales caractéristiques d'un poumon d'homme adulte (25).

- capacité pulmonaire	21
- surface externe estimée	1 000 cm2
 poids moyen 	500 g.
Epaisseur des tissus traversés sou	us l'aisselle : 20 mm
- épiderme	3 mm
	3 mm
- tissu certulaire	። ጠጠ
- muscle	10 mm.

Nombre de rayons X émis pour 10 000 pCi de ²³⁹Pu (4 % par désintégration) dans un pournon :

880 cpm.

2
3
2

Rendement du compteur

	Energies				
	13,6 keV	17,2 keV	20,2 keV		
Rendement du compteur	70 %	50 %	38 %		
Absorption dans le tissu	(95 %)	(85 %)	(72 %)		
Transmission	5 %	15 %	28 %		
Abondance des différentes raies ramenée à 1	0,4	0,5	0,1		

Soit un rendement moyen de 0,063.

C.P.M. : 880 x 0,063 x

un poumon (figure 36).

Nous avons procédé à des mesures expérimentales sur le fantôme :

Nous avons préparé trois sources liquides de plutonium 239 dans des cathéters de 1 mm de diamètre sur 30 mm de long. Le volume de chaque source était de 0,1 ml. Les niveaux d'activité : 11 000 pCi, 25 000 pCi, 52 000 pCi, ont été choisis pour représenter environ 1, 2 et 4 QMA par poumon. Les mesures ont été faites sur le poumon gauche avec une durée de comptage de 50 minutes.

Le tableau ci-après montre les valeurs moyennes obtenues exprimées en coups par minute.

	Mouvement propre		Bri	Brut		Net		
	10- 22,5	22,5 - 30	10 - 22,5	22,5 — 30	10 – 22,5	22,5 — 30		
Thorax 11 000 pCi	13	6	19	6	6	_		
25 000 pCi	-	6	26	-	13	_		
52 000 pCi	-	6	39	_	26			
dN/dE Ce résultat est du même ordre de grandeur que l'estimation théorique. 1 Source ²⁹ Pu 52000 pCi Compteur SEP. Source SEP.								

$$\frac{1}{2} \times \frac{1}{3} \times \frac{1}{2} = 4,6,$$

ce qui fait 4,6 coups par minute comptés dans la bande de 10 à 22,5 keV pour une activité de 10 000 pCi dans

Diffusion a travers les tissus

:



Source placée dans la cage thoracique

La figure 37 montre un spectre de QMA de plutonium avec et sans bruit de fond obtenu dans les mêmes conditions après 100 mn de comptage.



Figure 37.

IV - 5 - Estimation de l'activité naturelle du corps humain dans le bruit de fond

L'activité naturelle du corps humain due au potassium 40 et au césium 137 peut apporter une augmentation de l'activité mesurée dans la bande d'énergie de 10 à 22,5 keV.

Cette activité venant s'ajouter au bruit de fond physique sera dans les mesures in vivo une cause d'erreur pour l'estimation de la charge en plutonium. Certains auteurs (20) (2) ont évalué cette activité par des mesures sur fantôme. Les résultats sont liés à la sensibilité des compteurs utilisés, c'est-à-dire 1 à 2 coups par minute pour un homme moyen représentant une activité de 120 000 pCi de K plus 12 000 pCi de césium 137.

Nous avons fait des mesures sur trois sujets dont l'activité naturelle avait été mesurée à l'aide d'un anthropogammamètre.

	Taille m	Poids kg	K naturel g	¹³⁷ Cs pCi
Sujet n° 1	1,78 m	79	147	12 000
Sujet n° 2	1,80	77	146	6 700
Sujet n° 3	1,68	60	107	4 200

Une mesure de 30 minutes sur chacun des sujets a été faite dans notre installation. Le sujet était assis sur un siège, le compteur plaqué sur le côté gauche de la poitrine avec un angle par rapport à l'horizontale de 60°. Ces conditions de mesure – moins favorables au point de vue bruit de fond – nous étaient imposées par les dimensions de notre chambre blindée.

Le tableau ci-après donne les résultats obtenus :

	M.P c.p.m.		Brut c.p.m.		Net M.P. déduit	
	10 — 22,5	22,5 30	10 22,5	22,5 – 30	10 – 22,5	22,5 30
Sujet n° 1	18	12	22	20	4	8
Sujet n° 2	18	12	23	18	5	6
Sujet n° 3	18	12	21	16	3	4

Nous constatons une a 22,5 – 30 keV.

Ce résultat nous incite ces bandes d'énergie.

Des mesures séparées sur ces deux corps ont été faites en essayant de reproduire la diffusion et la répartition des sources dans les tissus humains.

Après avoir estimé arbitrairement le volume de muscles et tissus vu par le compteur (250 cm2 x 2 cm d'épaisseur) soit 500 cm3, nous avons réalisé des "coussins" en vinyle de 50 cm de côté. Nous avons mis 4 litres d'eau distillée dans ces coussins, quantité suffisante pour avoir une épaisseur moyenne d'eau de 2 cm sous la fenêtre du compteur. Des quantités connues de ¹³⁷Cs et de ⁴⁰K ont été ajoutées à l'eau dans chacun des coussins mesurés.

58

Nous constatons une augmentation d'activité dans les deux bandes d'énergie : 10 à 22,5 keV et

Ce résultat nous incite à rechercher les contributions respectives du césium et du potassium dans

Mesures sur le potassium

Quantité de potassium pour chaque coussin : 4, 8 et 16 grammes, ce qui représente 1, 2 et 4 grammes par litre (la quantité moyenne pour un individu est de 2 g de potassium par kilo).

	Mouvement propre		Br	Brut		Net	
	10 - 22,5	22,5 — 30	10 — 22,5	22,5 – 30	10 — 22,5	22,5 30	
1 g par litre	13	6	14	7	1	1	
2 g par litre	-	_	15	7,5	2	. 1,5	
4 g par litre		_	17	8,5	4	2,5	

Le tableau ci-après donne le résultat des mesures (durée 100 minutes).

Mesures sur le césium 137

Les mesures ont été faites avec des activités respectives de 1 280 pCi, 640 pCi et 320 pCi, représentant une activité par litre de 320 pCi, 160 pCi et 80 pCi. (L'activité moyenne est de l'ordre de 80 pCi par gramme de potassium naturel correspondant à l'homme "standard" 146 g de K naturel + 12 000 pCi de ¹³⁷Cs). Voici les résultats obtenus :

Concentration par litre	Mouvement, propre		Brut		Net	
	10 - 22,5	22,5 — 30	10 - 22,5	22,5 - 30	10 22,5	22,5 — 30
320 pCi par litre	13	6	13,5	14	0,5	8
160 pCi par litre	13	6	13, 5	10	0,5	4
80 pCi par litre	13	6	13,5	8	0,5	2

Nous constatons que la contribution du potassium est plus importante dans la bande de 10 à 22,5 keV que dans celle de 22,5 à 30 keV. Au contraire, en ce qui concerne le césium, l'activité est enregistrée dans la seconde bande. Reprenons les résultats relatifs à l'activité moyenne pour un individu - 80 pCi de ¹³⁷Cs par gramme de potassium naturel (on compte 140 g de K pour l'homme standard de 70 kg) – Nous obtenons, pour 2 grammes de K par litre : 2 coups nets par minute dans la bande de 10 à 22,5 keV et 1,5 coup dans la seconde bande, et pour 80 pCi de ¹³⁷Cs par gramme (coussin de 160 pCi/litre) 0.5 coup dans la première bande et 4 coups dans la seconde bande, ce qui fait :

> - 2,5 coups de 10 à 22,5 keV - 5.5 coups de 22,5 à 30 keV.

Si nous comparons ces résultats aux mesures in vivo par exemple sur le sujet n° 1 (146 g de K et 12 000 pCi de ¹³⁷Cs) nous trouvons 4 coups dans la première bande et 8 coups dans la seconde. Cela confirme la contribution du césium dans la seconde bande d'énergie.

Nous notons que l'activité mesurée sur les individus est plus importante (3 à 5 coups par minute) dans la bande du plutonium que l'estimation déduite du calcul fait plus haut (2 coups par minute). D'autre part, on note une certaine divergence dans les mesures.

En ce qui concerne le potassium, à la quantité de muscles estimée vue par le compteur, il faut ajouter le sang et le poumon qui contiennent également du potassium. Quant aux résultats de mesures divergentes, on peut donner deux raisons :

2 - la morphologie des sujets : nous verrons plus loin que la morphologie des individus est une cause d'erreur importante. Nous savons qu'il n'est pas possible d'obtenir la même reproductibilité de mesure d'un individu à un autre comme elle est obtenue sur des sources physiques.

Malgré cela, ces premières mesures nous permettent déjà de chiffrer le mouvement propre apporté par l'activité naturelle à une valeur comprise entre 3 et 5 coups par minute dans la bande du plutonium.

IV - 6 - Contribution d'une contamination en américium 241

Nous avons vu dans le chapitre consacré au plutonium et sa détection, que des quantités variables d'américium 241 pouvaient, en fonction de l'ancienneté ou de l'origine, être contenues dans le ²³⁹Pu.

Bien que pour certaines applications, le ²³⁹Pu doit être isotopiquement le plus pur, celui destiné aux applications industrielles n'a pas toujours besoin d'un taux de pureté élevé. Certains auteurs (6) ont fait d'ailleurs des mesures sur l'américium pour évaluer une contamination en ²³⁹Pu. C'est pourquoi il nous a paru intéressant d'étudier les possibilités de détection du compteur SEP pour ce radioélément, notamment sur la raie γ de 60 keV.

Rappelons que le 241 Am - Z 95 - est un émetteur α d'énergie de 5,5 MeV - période de 458 ans.

Plusieurs raies X et γ sont associées aux désintégrations α (figure 37 bis).

- Raies XL : 13.8 - 17.3 et 20.2 keV -, Raics γ : 26 - 33 et 59,6 keV.

C'est cette dernière qui présente un intérêt pour la mesure en raison de son abondance (36,6 %) et de sa faible absorption par les tissus.

60

1 - le temps de mesure plus court : il est difficile en effet de maintenir longtemps un patient enfermé dans une position relativement inconfortable,

Définition des conditions de mesure

L'efficacité du compteur est voisine de 15 % pour 60 keV.

Le sélecteur d'amplitude nous permet de définir une bande d'énergie allant de 10 à 80 keV que nous avons découpée en trois parties :

- 10	à	22,5	keV
- 22,5	à	50	keV
- 50	à	70	keV.

Il faut noter que le xénon présente une discontinuité d'absorption (raie XK) à 30 keV.

Nous avons préparé une source liquide de 241 Am de 0,4 μ Ci dans un cathéter de 1 mm de diamètre – volume 0,2 ml – La source est placée au milieu du poumon du thorax artificiel dans les mêmes conditions de mesure que pour le ²³⁹Pu. Nous avons obtenu les résultats suivants (c.p.m.) :

	10 - 22,5	22,5 - 50	50 — 70
Activité brute	2 400	1 860	1 060
Mouvement propre	· 13	10	3
Activité netre	2 400	1 850	1 100

Spectre donné par la figure 37 ter.

Nous avons vérifié la contribution de l'activité naturelle dans la bande de 60 keV sur le sujet n° 1 (146 g de K + 12 000 pCi de ¹³⁷Cs). Nous n'avons relevé aucun comptage positif dans cette bande après une mesure de 30 minutes.

Nous avons fait une mesure comparative avec un cristal Nal(TI) de 5"x 5", destiné aux mesures anthropogammamétriques sur trois positions différentes du thorax :

- 1 Thorax sur le dos à 20 cm du cristal
- 2 Thorax sur le dos au contact du cristal
- 3 Thorax sur le côté, même géométrie que pour le compteur proportionnel.

.

Nous avons obtenu les résultats suivants dans la bande de 50 à 70 keV (coups par minute) :



Source de ²⁴¹Am 0,4µCi absorbée par le thorax artificiel

	Position 1	Position 2	Position 3
Activité brute en cpm	330	1 506	2 685
M.P.	65	65	65
Net	275	1 440	2 620

Si l'on rapproche les mesures dans la position la plus favorable, nous constatons que le rapport signal sur bruit est nettement en faveur du compteur proportionnel. Cela permet d'envisager l'utilisation de ce détecteur pour explorer une bande d'énergie allant de 10 keV à 70 keV recoupant ainsi la bande d'énergie analysée par l'anthropogammamètre comprise entre 50 keV et 2 MeV.

Mais pour que la contribution du ²⁴¹Am soit notable, la quantité contenue dans le ²³⁹Pu devra être relativement importante. En effet, si 1 mg de ²³⁹Pu et 1 mg de ²⁴¹Am émettent respectivement 2,27.10⁶ α /seconde et 1,2.10⁸ α /seconde, 1 000 pCi de ²⁴¹Am n'apportent que trois coups par minute dans la bande de 60 keV. Au niveau de la Q.M.A., cela représente 10 % de l'activité du ²³⁹Pu, soit 2 000 p.p.m.

Les taux de ²⁴¹Am communiqués se situent entre 400 ppm et 1 700 ppm, c'est-à-dire à la limite de détection du compteur.

IV - 7 - La précision des mesures et le seuil de sensibilité

Les précédentes expériences nous permettent de définir la précision des mesures et le seuil de sensibilité de notre installation.

En effet, nous connaissons :

£

- le nombre de coups apportés - 5 par minute - dans la bande du plutonium par une source de 10 000 pCi placée dans le thorax artificiel, lequel est l'équivalent de l'homme dit "standard" défini, au point de vue morphologique, par une taille de 1,70 m et un poids de 70 kg.

- la contribution moyenne de l'activité naturelle (potassium + césium) dans la bande du plutonium (l'activité naturelle pour l'homme "standard" est égale à 11 000 pCi de césium pour 140 g de potassium naturel, autrement dit 80 pCi de ¹³⁷Cs par gramme de K naturel) soit 4 coups par minute.

· le mouvement propre du compteur mesuré en position horizontale avec le thorax inactif, soit 13 coups par minute.

A partir de ces chiffres, nous pouvons évaluer la précision d'une mesure de 50 minutes.

pendant toute la durée du comptage.

Définition du seuil de sensibilité

A partir des résultats des mesures in vitro, nous allons définir :

- l'erreur attribuée aux fluctuations du bruit de fond

· le seuil de sensibilité de l'installation.

Erreur due aux fluctuations du bruit de fond

Nous avons fait cent mesures de mouvement propre de 50 minutes chacune avec le thorax artificiel. De ces mesures, nous avons tiré $\overline{N} - N$ = nombre de coups comptés pour une mesure - dans la

bande d'énergie de 10 à 22,5 keV, ainsi que l'écart quadratique moyen : $\sigma = \sqrt{\frac{2}{N}}$.

Nous avons trouvé :

75 mesures à ± σ

96 mesures à ± 2 σ 100 mesures à \pm 3 σ

Nous pouvons conclure à une bonne stabilité du mouvement propre dans cette bande d'énergie.

Seuil de sensibilité

dans la bande du plutonium

50 S = M - N

M est le nombre de coups enregistrés en 50 minutes sur le patient, N est la valeur moyenne du bruit de fond déduite des 100 mesures de 50 minutes.

Dans ces conditions, l'écart quadratique de 50 S est sensiblement le même que celui sur M

d'où σ 50 S = \sqrt{M}

La durée de 50 minutes pour une mesure in vivo sur un poumon représente le temps généralement admis comme limite raisonnable d'une mesure humaine. Il faut considérer que le patient doit rester immobile

Nous verrons dans le paragraphe suivant que ce temps de mesure apporte une précision suffisante.

Cela nous permet de définir le seuil de sensibilité de l'installation.

Nous procédons de la façon suivante : soit S le nombre de coups par minute apportés par le patient

Une personne non contaminée accidentellement a cependant un spectre X au compteur proportionnel donnant environ 4 coups par minute dus au ¹³⁷Cs et ⁴⁰K. L'incertitude sur cette valeur, compte tenu des variations morphologiques et de la charge de ces éléments déterminés à l'anthropogammamètre, est de ± 1 coup par minute.

Envisageons d'abord un individu "standard" non contaminé donnant 4 cpm :

$$\sigma$$
 50 S = $\sqrt{(13 + 4)}$ 50 = $\sqrt{850}$ = 29
 σ S = $\frac{29}{50}$ = 0,58 cpm.

Nous avons 95 % de chance pour trouver : $17 \pm 1,2$ cpm.

Un individu non "standard" donnera avec la même probabilité 17 ± 2,2 cpm.

Or nous avons trouve que 10 000 pCi de ²³⁹Pu dans le poumon apportait 5 cpm (plutonium supposé concentré à 8 cm de la peau). Nous voyons donc qu'à la limite, l'appareil peut déceler 5 000 pCi. La Q.M.A. pour un poumon représente 8 000 pCi. Le seuil de sensibilité est par conséquent inférieur à la Q.M.A. de 3 000 pCi.

Causes d'erreur

.

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu qu'en dehors de l'erreur causée par les fluctuations statistiques, il fallait tenir compte de l'erreur due à une activité naturelle du sujet et de celle due à sa morphologie.

La première cause d'erreur peut être réduite par la mesure à l'anthropogammamètre. Il faut souligner que le taux d'activité naturelle des hommes et des femmes sont connus et font l'objet de mesures systématiques permanentes. Ces taux s'écartent de facon assez rare, sauf contamination accidentelle, des valeurs moyennes,

La seconde cause d'erreur due à la morphologie entraîne une variation d'absorption du rayonnement X émis par le plutonium.

En effet pour un individu donné, compte tenu de son activité naturelle, à partir du seuil défini plus haut, si l'on considère la mesure positive, il n'est pas permis d'affirmer à priori que la charge est égale, inférieure ou supérieure à la Q.M.A.

C'est pourquoi, il nous a paru utile d'étudier une méthode "d'étalonnage interne" de l'individu que nous décrirons dans le chapitre consacré aux mesures in vivo.

Cette méthode qui permet d'évaluer la charge pulmonaire, s'applique principalement aux résultats très positifs, la Q.M.A. restant par définition le seuil limite sans danger pour l'homme,

V - 1 - La morphologie de l'individu

La sensibilité du détecteur, l'abaissement et la stabilité du bruit de fond perméttent de faire des mesures reproductibles sur des sources physiques. Il n'en est pas de même de la mesure in vivo. En effet, la morphologie est différente d'un individu à l'autre. On sait qu'une variation de l'épaisseur du tissu musculaire de 0.6 cm (20) introduit un facteur 2 dans l'estimation. C'est pourquoi, lorsque la mesure est positive, la contamination ne pourra être chiffrée qu'avec une marge d'erreur difficile à apprécier. Pour connaitre le rendement global, il est nécessaire de faire un "étalonnage interne" de l'individu (27).

Des essais de mesures quantitatives ont été faits sur des individus par M.R. BOSS et J.R. MANN (1952) (6) à la suite de contaminations accidentelles en plutonium 239 en utilisant la raie de 60 keV émise par l'américium 241 contenu comme impureté dans le plutonium 239,

Nous savons que cette méthode n'est valable que si la quantité d'américium 241 est importante et surtout si la proportion d'américium 241 contenu dans le plutonium 239 est connue.

D. RAMSDEN (28) et Coll. décrivent une méthode d'évaluation de l'épaisseur des tissus musculaires sur la poitrine à l'aide d'un générateur d'ultrasons. Les auteurs ont fait des mesures sur 19 sujets. Les résultats publiés montrent que l'épaisseur de tissu se répartit selon les sujets entre 1 cm et 3 cm, sur les côtes.

niveau de contamination.

V - 2 - Les simulateurs de plutonium

Certains auteurs proposent une possibilité d'étalonnage basée sur l'inhalation par des sujets volontaires (20) d'un mélange d'isotopes radipactifs reproduisant les raies XL du plutonium.

Ces isotopes doivent présenter des caractéristiques telles que l'on puisse faire une estimation de la quantité réellement présente dans le pour par une méthode connue (par exemple émission de raie γ permettant de faire une mesure quantitative au moyen d'un anthropogammamètre).

B.T. TAYLOR et J. RUNDO proposent un simulateur de plutonium répondant en partie aux conditions citées plus haut. Il s'agit d'un mélange de trois isotopes :

Les proportions de ces trois isotopes sont choisies afin de reproduire les intensités relatives des raies X du plutonium. La quantité déposée dans le pournon après inhalation peut être estimée par la mesure de la raie de 0,5 MeV du Strontium 85. Cette méthode présente néanmoins quelques inconvénients. Tout d'abord le mélange de ces isotopes, en raison de leurs différentes propriétés chimiques est difficile à réaliser. D'autre part, l'énergie de la raie XK du Cadmium 109 de 22,2 keV est de 1,8 keV superieure à celle de la raie XL du plutonium. Cette différence d'énergie apporte une erreur non négligeable dans la mesure (coëfficient d'absorption).

V - LES MESURES IN VIVO

Cela confirme la nécessité de faire un "étalonnage interne" chaque fois que l'on veut connaître le

- Strontium 85 (période 65 jours) avec une raie XK de 13,4 keV et une raie γ de 0,51 MeV. - Molybdène 99 (période de 2 jours) qui émet une raie XK de 16,6 keV.

- Cadmium 109 (période de 470 jours) qui émet une raie de 22,2 keV.

Enfin, la différence de distribution entre le "simulateur de plutonium" et le plutonium dans les poumons en raison de leurs caractéristiques physico-chimiques, est également une cause d'erreur difficile à estimer.

V - 3 - Le protactinium 233

Nous avons ainsi été amenés à chercher un simulateur de plutonium plus adapté : le protactinium 233.

La période du protactinium 233 est de 27,4 jours. Il décroit par désintégration β^{-} pour former l'uranium 233,

$$233_{\text{Th}} \ \beta^{-} \ \beta^{-} \ 27,4 \text{ jours} \ \beta^{-} \ 1.62 \ 10^{5} \text{ années}$$

95 % des désintégrations β^{-} (29) (30) donnent des états excités de l'uranium 233. Ces états sont fortement convertis et l'on obtient des raies XL de l'uranium 233 ainsi que deux raies à 100 et 312 keV émises sensiblement dans les mêmes proportions, soit environ 47 % pour chacune d'elles.

Or, le plutonium 239 donne par émission α des états excités de l'uranium 235 responsable de l'émission XL de ce radionuclide. On s'attend donc à obtenir du protactinium 233 un spectre de raies XL semblable à celui du plutonium 239. Les énergies mesurées avec le compteur proportionnel se répartissent ainsi,

Ces énergies, ainsi que la hauteur relative des raies (figures 38, 39) sont comparables à celle de l'uranium 235.

Expérimentalement, nous avons trouvé une abondance de 27 % par désintégration.

Ce radioélément est donc particulièrement bien adapté pour apporter une solution au problème puisque son spectre X est pratiquement superposable à celui du plutonium 239 et qu'il possède deux raies γ .

Sa période est relativement courte pour permettre d'inhaler une quantité suffisante et assez longue pour répéter les mesures dans le temps sans être gêné par les différentes périodes des isotopes composant le mélange proposé par TAYLOR et Coll.

En partant des concentrations maximales admissibles (C.M.A.) fixées par l'I.C.R.P. (1) l'inhalation tolérable est de 2 μ Ci pour 8 heures de travail. La quantité maximale admissible (Q.M.A.) est donc compatible avec la quantité nécessaire pour permettre de faire l'étalonnage (de l'ordre de 0,2 μ Ci).

V - 4 - Les mesures sur animaux

Nous avons fait une série d'essais sur des rats pour étudier la rétention du protactinium au niveau du pour on après inhalation.

68

dN dE







Source ²³³Pa, ponctuelle Non collimatée placée à 10 cm

.

SA 40 A Intertechnique.

Les inhalations ont été faites à l'aide d'un ensemble générateur d'aérosols réalisé spécialement pour cette expérience. Cet ensemble comprend (figure 40, 40 bis) :

- deux flacons pièges

Nous avons étalonné notre ensemble de mesure γ avec des rats auxquels a été injectée par voie intraveineuse une quantité connue de protactinium 233. Le poids des animaux choisis pour toute l'expérimentation était compris entre 250 g et 300 g.



Nous avons utilisé pour les mesures un détecteur γ Nal(TI) de 5" x 5" associé à un sélecteur

- une pompe compresseur, débit 15 litres par minute

- une colonne génératrice d'aérosol "JOUAN n° 2 O.R.L." contenant le radioélément

- une enceinte cubique en plexiglas, volume 10 litres concentrant l'aérosol respiré par l'animal - un système d'évacuation de l'air contaminé vers une hotte d'aspiration par l'intermédiaire de

- une "boîte de contention" permettant la respiration de l'animal dans l'enceinte tout en préservant son corps de la contamination.

Figure 40. Générateur d'aérosol pour inhalation animale

-



Figure 40bis Générateur d'aérosol pour inhalation animale.

Inhalation

Le débit de la colonne génératrice d'aérosol étant de 5 ml/heure, l'activité de "départ" a été fixée à 300 μ Ci/5 ml pour une durée d'inhalation de une heure.

Mesures

Deux séries d'animaux ont subi une inhalation : la première a été sacrifiée immédiatement après l'inhalation, la seconde après plusieurs jours. Nous avons obtenu les résultats suivants :

a) Sacrifice immédiat

	Activité en pCi							
	n°1	n°2	n°3	n°4	n°5	n°6	n°7	
Rat entier	160 000	380 000	340 000	1 10 ⁶	1,5 10 ⁶	1,3 10 ⁶	480 000	
Poumon	32 000	42 000	9 200	100 000	100 000	40 000	13 000	
Trachée		2 500	3 700	15 000	5 000	2 500	1 600	
Tête	85 000	310 000	290 000	730 000	106	850 000	350 000	
Corps		7 500	4 600		265 000	250 000	40 000	

b) Sacrifice après plusieurs jours

N°	Activité inhalée	Temps d'incubation	Activité restante avant sacrifice	Activité pulmonaire	%
	0 <i>u</i> Ci 45	11 jours	75.000 pCi	46 500 pCi	60 %
2	ο μci 15 Ο μCi 85	10 jours	89 000 pCi	68 000 pCi	75 %
3	1 μCi 50	20 jours	96 000 pCi	82 500 pCi	80 %
4	3 μCi 15	19 jours	150 000 pCi	93 000 pCi	60 %
5	1 μCi 90	20 jours	83 000 pCi	64 200 pCi	75 %
6	- 1 μCi 40	22 jours	135 000 pCi	94 500 pCi	70 %
7	0 µCi 86	21 jours	80 000 pCi	55 500 pCi	70 %
8	1 μCi 35	21 jours	65 500 pCi	50 500 pCi	75 %
9	0 μCi 63	21 jours	42 800 pCi	31 500 pCi	75 %
10	1 μCi 15	20 jours	121 000 pCi	93 200 pCi	75 %

plus de la période physique.

Remarques

42).

éléments de SACLAY.

L'histogramme de la figure 41 montre la répartition par organe de la contamination.

Le tableau suivant donne l'activité restante après plusieurs jours (10 à 20 jours).

Nous voyons que 60 à 80 % de l'activité reste fixée au niveau du poumon (histogramme figure

La courbe de la figure 43 montre qu'au bout de 10 jours la décroissance se rapproche de plus en

La source de ²³³Pa est livrée en solution fluorhydrique au 1/10e par le Département des Radio-

La C.M.A. d'acide FH est, pour un aérosol, de 2 milligrammes par m3 en continu (32). Elle est de 2 g/m3 en contamination accidentelle. La concentration utilisée pour l'animal était à 1 %,;ce qui fait pour 300 μ Ci/5ml, 0,05 cm3 d'acide fluorhydrique pur, soit 50 mg/m3. Nous avons fait faire un examen anatomopathologique par le service de radio-pathologie du D.P.S., Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-aux-ROSES. Les résultats de ces examens indiquent une irritation de la trachée mais aucune lésion pulmonaire.



Poumons

75

.





76

Il n'est pas certain que la répartition pulmonaire du protactinium après inhalation expérimentale

sera la même que celle du plutonium au cours d'une contamination réelle (forme chimique, granulométrie, etc...). Cependant, les premiers essais d'inhalation chez l'animal laissent penser que ce nuclide sans danger est particulièrement intéressant pour atteindre le but recherché, c'est-à-dire "l'étalonnage interne" chez l'individu.

V - 5 - L'étalonnage interne de l'individu

pour les animaux.

L'enceinte de concentration de l'aérosol est de 20 litres. La boite de contention est remplacée par un dispositif respiratoire muni d'un embout buccal (figure 44). Une première série d'expériences avec du sodium 24 (période de 15 heures) est envisagée pour définir le rendement de cette installation, c'est-à-dire l'activité inhalée par rapport à l'activité de départ. Nous avons prévu ensuite des expériences humaines avec le protactinium 233.

D'autre part, nous avons fait des mesures comparatives γ et X sur le thorax artificiel avec une source de 0,1 μ Ci de ²³³Pa placée au milieu du poumon gauche (cathéter de 1 mm/30 mm).

Les mesures y ont été faites sur un anthropogammamètre en deux positions : position dite "Miller" et position allongée (figure 45).

Après 10 minutes de comptage, mouvement propre déduit, nous avons trouvé (figure 46) :

Position Miller (figure 7).

= 3090 cpmPic de 312 keV = 1 329 cpm

Rendement global

Rendement pic 312 keV (1 cpm = 74 pCi)

Rapport pic/total

Position allongée (géométrie axée sur le thorax)

= 4 795 cpm

Pic 320 keV = 2 103 cpm

.

Dans les inhalations humaines envisagées, l'activité de départ ne représentera que 1 à 2 μ Ci. c'est-à-dire 150 fois moins que celle utilisée pour les rats. Cela équivaudra à 0.35 mg/m3 d'acide fluorhydrique soit 1/6 de la C.M.A. contre 25 fois la C.M.A. pour les rats.

Nous avons réalisé un ensemble destiné aux inhalations humaines tiré directement de celui réalisé

3 %

1,4 %

0,43









.

.

Thorax artificiel ; position de MILLER

Rendement global	5	%
Rendement pic 320 keV (1 cpm = 47,6 pCi)	2,2	%
Rapport pic/total	0,4	3

Mesure compteur proportionnel (figure 47)

	3 – 10 keV	10 – 22,5 keV	22,5 — 30 keV	Net
	cpm	cpm	cpm	10 – 22,5 keV
Sous l'aisselle	130	393	110	380

80

<

Rendement de 10 à 22,5 keV : 1 cpm = 274 pCi.

Nous voyons déjà que la mesure γ et X avec une source de 0,1 μ Ci ne présente pas de grande difficulté. En ce qui concerne la mesure in vivo, le mode opératoire proposé serait le suivant :

Après une recherche positive de plutonium pulmonaire au moyen du compteur proportionnel dans la bande d'énergie comprise entre 10 et 22,5 keV, le sujet inhale un aérosol de protactinium. Une ou plusieurs mesures au moyen de l'anthropogammamètre sur la raie de 312 keV permet de connaitre exactement la quantité de protactinium fixée. Une seconde mesure au moyen du compteur X donne une nouvelle activité dans la zone de 10 à 22,5 keV. L'accroissement de l'activité mesurée dans cette bande d'énergie pouvant être relié à une activité vraie grâce à la mesure γ , on peut en déduire le facteur permettant de calculer la contamination initiale en plutonium (avec bien entendu les réserves formulées au paragraphe 4 sur la répartition du protactinium dans le poumon).

L'irradiation supplémentaire due au protactinium au niveau d'activité considéré est négligeable, car la quantité inhalée au cours de ce test est égale à la Q.M.A. pour un individu au cours de 8 heures de travail (1 μ Ci déposé au niveau du poumon représente une dose de 300 millirems, ce qui est très inférieur à une simple radioscopie pulmonaire).

En outre, l'inhalation du protactinium 233 permettrait dans des conditions assez réalistes de faire l'étalonnage des installations, d'étudier la dispersion des résultats liés aux facteurs morphologiques individuels.

.



Figure 47. Thorax artificiel

· ·

dN dE

200

CONCLUSION

Réalisation définitive

N

Les résultats obtenus avec notre installation expérimentale nous permettent de définir un ensemble de mesures qui peut être mis à la disposition des services médicaux ou de radioprotection pour le contrôle des personnes dont ils sont responsables.

Nous avons vu qu'il était intéressant, au cours d'une mesure sur un patient, d'explorer de larges bandes d'énergie en dehors de la bande du plutonium. RAMSDEN (Grande-Bretagne) (31) propose une réalisation couvrant sans discontinuité une bande de 10 keV à 2 MeV, utilisant trois détecteurs différents :

- un compteur proportionnel
- un cristal mince (\$\phi\$ 200 mm x 3 mm) Nal (TI) cristal Nal (TI) 8" x 4".

Or, le compteur que nous utilisons présente une efficacité suffisante jusqu'à 70 keV. Nous disposons d'autre part d'un cristal 5" x 5" permettant de faire des mesures de 50 keV à 2 MeV.

L'association de ces deux détecteurs dans une même enceinte blindée de dimensions convenables - 2 m x 2 m x 2 m - nous permet de faire une mesure spectrométrique couvrant une gamme d'énergie allant de 10 keV à 2 MeV.

Le diagramme schématique de la figure 48 situe les différents éléments de l'ensemble que nous réalisons.



propre à chacun d'eux.

L'électronique associée dans sa version définitive est totalement transistorisée.

L'estimation de la contamination

nium pulmonaire, notamment :

- l'activité naturelle du corps humain

veau

Cependant, une augmentation de l'activité dans la bande de 10 à 22,5 keV sur un patient ne signifie pas obligatoirement qu'il s'agit de ²³⁹Pu. C'est pourquoi nous avons insisté sur la nécessité de mesures complémentaires :

²³⁹Pu/²⁴¹Am est suffisant.

Ces mesures pourront être complétées par des contrôles faits par les méthodes radiotoxicologiques classiques - avant ou après la mesure in vivo - notamment sur l'élimination du plutonium soluble.

La connaissance complète au point de vue "radioactif" du patient confirme alors l'hypothèse de la contamination pulmonaire par du ²³⁹Pu insoluble. A ce moment là, l'Autorité Médicale responsable peut envisager l'opportunité d'un "étalonnage interne" au moyen d'une "surcharge" en protactinium 233 afin de chiffrer la charge pulmonaire.

humain.

82

Les détecteurs sont fixés par un système mécanique permettant d'adapter facilement la géométrie

Au cours de ce travail, nous avons analysé les problèmes posés par la détection in vivo du pluto-

le mouvement propre du compteur

l'étalonnage pour les mesures in vivo

Nous avons trouvé des solutions qui nous permettent d'atteindre le but proposé : déceler une contamination accidentelle en ²³⁹Pu au níveau de la Q.M.A. Notre seuil de détection est même inférieur à ce ni-

- la mesure à l'anthropogammamètre qui permet de connaître le taux de potassium et de césium d'identifier le cas échéant, d'autres radioéléments (produits de fission, radium, etc...)

- la mesure au compteur proportionnel de la raie de 60 keV de l'américium 241 si le rapport

Cette installation pourra servir également, sur un grand nombre de sujets, à établir la corrélation existante entre les résultats des mesures y et des mesures X dans le domaine de l'activité naturelle du corps

BIBLIOGRAPHIE

- Rapport du Comité II, 1959 2 - R.G. SEIGHT, C.O. PEABODY, D. RAMSDEN An improved chest phantom for studies of plutonium and americium in human lung. "Assessement Radioactivity in man", C.R. Symposium Heidelberg, 1964, pp. 114 - 130. 3 - D. RAMSDEN Multiwire proportional counter for the detection of plutonium in vivo. Rapport A.E.E.W. M.526, 1965 4 - A. LANSIART, J.P. MORUCCI Nouveau compteur proportionnel destiné à la détection in vivo des traces de plutonium dans les poumons, "Assessement of radioactivity in man", C.R. Symposium Heidelberg, 1964, pp. 131-140. 5 - R. EHRET, H. KIEFFER, R. MAUSHART.
 - Performance of an arrangement of several large aera proportional counter for assessement of plutonium lungs. "Assessement of radioactivity in man", C.R. Symposium, Heidelberg, 1964, pp 141-149.
- 6 M.R. BOSS, J.R. MANN.
 - Body counter evaluation of plutonium exposure. "Health Physics", 1967, vol. 13, pp. 259-266.
- 7 J.P. MORUCCI.

1 - I.C.R.P.

- Nouveau compteur proportionnel destiné à la détection in vivo des traces de plutonium dans les poumons.
- Rapport C.E.A. n° 3027, (1966).
- 8 P. PASCAL.

Nouveau traité de chimie minérale. Tome XV, 3e fascicule, pp. 325-331.

9 - G. ROUX.

Spectromètre utilisant les détecteurs à semiconducteur. Rapport : DE/1641/EAEP. 230, CEN/Saclay.

.

10 - P. HENRY,

Métabolisme et toxicologie du plutonium 239. Rapport C.E.A. 2381, C.E.N/Marcoule (1963).

.

- 11- J. BALLADA.
 - Rapport interne C.E.A./D.P.S. CEN/FAR. (1965)
- 12- K.G. SCOTT et Coll. "Arch. Pathol.", 1949, 48, p. 31.
- 13- W.J. BAIR. "Health Physics", 1962, vol. 8 nº 6 - 12.
- 14- W.R. LANGHAM. "Health Physics", 1959, vol. 2, n° 2, p. 172.
- 15 W.H. LANGHAM et Coll. "Health Physics", 1962, vol. 8, n° 6, p. 753.
- 16 J. BALLADA Rapport, C.E.A. R. 3220 (1967) p. 15.
- 17 Ph. GUAY et Coll. à l'analyse de faibles quantités de Pu-241. Note C.E.A. n[°] 552, (1965).
- 18 · J. LEQUAIS. Rapport, DE/1639/EAEP/229. (1962).
- 18'- M. TROUBLE. Etude d'une méthode de détection du plutonium.
- 19 B. JOUVE. Rapport, C.E.A. n° 2231 (1962).
- 20 B.T. TAYLOR, J. RUNDO.
- 21 BRIERE. Note C.E.A. n° 659, 1967, pp. 57-59.

84

Les dangers des contaminations par le plutonium.

Deposition and fate of plutonium and uranium and their fission products inhaled as aerosols.

Physiology and toxicology of 239-Pu and its industrial medical control.

The Los Alamos scientific laboratories experiences with Pu in man.

Détermination analytique du plutonium dans l'environnement.

Mesures de très faibles activités en Am-241 par spectrométrie γ du rayonnement γ émis. Application

Détecteur à scintillation du rayonnement X à faible niveau. Application à la détection du Pu-239.

Application à la mesure des contaminations sur l'homme. Thèse d'Ingénieur-Docteur, Faculté des Sciences, Paris le 6.2.63

Spectrographie γ à grande sensibilité. Application à la mesure de l'activité du corps humain.

A progress report in the measurement of plutonium in vivo. "Radioactivity in man" second symposium, 1965, pp. 52-68.

22- J.G. WILSON.

Cosmic ray physic. Vol. III, 1956, North Holland Publ. Cy, Ed (Amsterdam).

23 J.L. CULHANE et Coll.

Advances in the design and performances of X-ray proportionnal counter. "J.S.C.I. Instrument", 1966 , Vol. 43, p. 508.

24 - SPIERS.

"British J. Radiology", 1946, 19, p. 52.

- 25 E.R. WEIBEL. Morphometry of the human lung. 1963, p. 130, Springer Verglag ed.
- 26 · L. JEANMAIRE. Installation anthropogammamétriques du D.P.S. à Fontenay-aux-Roses. (communication personnelle de l'auteur).
- P. BOULAY, J.J. CHIVOT. L. JEANMAIRE, A. LANSIART.
 Le protactinium 233, "simulateur de plutonium", pour la mesure directe d'une contamination pulmonaire.
 1967, C.R. Acad. Sc. (Physique).
- 28 D. RAMSDEN, PEABODY, SPEIGHT. The use of ultrasonics to investigate tissue thicknesses on the human chest. Rapport, A.E.E.W. R.493, 1967.
- 29 D. STRONINGER, J.M. HOLLANDER, G.T. SEABORG. "Review of modern physics", 1958, vol. 10, n° 2, part II.
- 30 CROUTHAMEL. "Applied gamma spectrometry". Pergemon Press Ed.
- 31- RAMSDEN, SPEIGHT. Radiological and safety division Winfrith Establ. Rapport, A.E.E. W. R. 494, (1967).
- 32 Frank A. PATTY.
 - Ed, "Industrial hygiene and toxicology".

Vol. II, p. 843. Interscience Publ. John Willey et sons. (New-York).

Manuscrit reçu le 3.5.1968.

.