Estimation de la dose absorbée en cas d'exposition aux neutrons rapides à l'aide de la transmutation du soufre en phosphore dans le système pileux

G. LEMAIRE*, J. DHERMAIN**, M.L. REMY***, R. MASSE*

(Manuscrit reçu le 28 août 1991)

RÉSUMÉ

Les auteurs se sont intéressés à la réaction nucléaire $^{32}\text{S}(n, p) ^{32}\text{P}$ qui a lieu entre autres dans les phanères de l'homme (cheveux et poils) lors d'accident de criticité ou de surexposition aux neutrons d'énergie supérieure à 2,5 MeV. La présence de ^{32}P dans les cheveux ou les poils est un signe indiscutable d'une exposition aux neutrons rapides. L'activité du ^{32}P décelée est directement proportionnelle à la fluence neutronique. Elle permet une estimation précise de la dose absorbée dès lors que l'on connaît la nature du spectre incident. La connaissance du rapport neutron/gamma autorise même l'estimation de la dose totale absorbée (neutron + gamma).

Les petites quantités de phanères nécessaires aux mesures (quelques dizaines de mg) permettent sur un individu de pilosité moyenne de faire des prélèvements en différents points du corps. On en déduit alors le vecteur directeur de la fluence incidente et l'hétérogénéité de l'exposition. Cette méthode est opérationnelle. Elle n'exige pas de radiochimie trop ardue. Elle apporte des données dosimétriques très fiables aux cliniciens en moins de vingt quatre heures. Le seuil de détection est de quelques dizaines de centigray.

ABSTRACT

The nuclear reaction $^{32}\text{S}(n, p) ^{32}\text{P}$ occurring in human hair has been studied in the case of criticality accident or overexposure to neutrons with energy above 2.5 MeV. The occurrence of ^{32}P is an obvious sign of exposure to fast neutrons. The detected activity of ^{32}P is directly proportional to the neutron fluence. It allows an accurate assessment of the absorbed dose provided the nature of the incident spectrum is known. The total absorbed dose can even be assessed if the neutron/gamma ratio is known.

Because very small amounts of hair are required for the measurements (a few ten milligrams) samples can be taken in various parts of the body of an average hairy individual. The direct incident fluence vector and the heterogeneity of the exposure can be then derived. This operational method requires no difficult radiochemistry. The physicians are supplied with very reliable dosimetric data within 24 h. The detection threshold is about a few ten centigrays.

* Commissariat à l'énergie atomique, Direction des sciences du vivant, Département de pathologie et toxicologie expérimentales, BP n° 6, 92265 Fontenay-aux-Roses Cedex.

** Délégation générale à l'armement, Centre d'études du Bouchet, Département Détection Protection Nucléaire, 16 bis avenue Prieur de la Côte d'or, 94114 Arcueil Cedex.

*** Service central de protection contre les rayonnements ionisants (SCPRI), Département de radiochimie, 31 rue de l'écluse, 78110 Le Vésinet.

I. INTRODUCTION

L'expérience des cinquante dernières années a montré que les accidents de surexposition impliquant des neutrons étaient très rares. Ils peuvent, toutefois, survenir auprès d'un grand nombre d'installations nucléaires (réacteurs électronucléaires et de recherche, accélérateurs de particules, centres de retraitement des combustibles irradiés, etc.) et à grande échelle lors d'utilisation militaire. Ne pouvant négliger ces accidents comme trop peu probables, il faut donc s'en soucier. Cela est si vrai qu'en 1962, l'AIEA leur a consacré un manuel entier [1].

C'est pourquoi, dans le cadre de la maintenance "opérationnelle" des moyens dosimétriques sur lesquels le Centre international de radiopathologie (CIR)¹ s'appuierait en cas d'accident de surexposition aux neutrons, une nouvelle expérimentation a été entreprise en vue d'estimer la dose absorbée par le biais de mesures d'activation. En effet, malgré les moyens modernes hautement sophistiqués qu'offre aujourd'hui la dosimétrie, le médecin confronté à un irradié ne peut, dans l'immédiat, pour établir un pronostic, que compter sur les analyses sémiologique, hématologique et électroencéphalographique. Encore faut-il remarquer que ces paramètres biologiques ne peuvent pas révéler l'hétérogénéité de la dose absorbée dont on connaît l'importance considérable sur l'évolution du syndrome de la "maladie des radiations" et sa thérapeutique. Le bilan des accidents de surexposition fait apparaître que deux tiers de ceux-ci conduisent à des irradiations hétérogènes [24]. En cas d'exposition aux neutrons ou à une fluence mixte neutron-gamma, l'hétérogénéité sera de règle compte tenu de l'intense gradient de dose "neutron" qui s'établit dans les milieux hydrogénés.

Toute indication dosimétrique précoce est un élément important du pronostic et favorise l'établissement d'une stratégie thérapeutique rationnelle et cela, d'autant plus, si elle autorise une estimation, même grossière, de l'hétérogénéité de l'exposition. C'est pourquoi il nous est apparu utile de déterminer, à cette occasion, dans quelle mesure on pouvait rapidement estimer de "manière opérationnelle" en cas d'accident de criticité ou d'exposition accidentelle aux neutrons la fluence "neutron" à partir du soufre contenu dans les phanères, quelle était la sensibilité de la méthode afin de pouvoir l'utiliser éventuellement pour appréhender l'hétérogénéité de l'exposition et calculer la dose absorbée due à la composante neutronique de la fluence.

Les analyses par activation effectuées dans ce but ne sont pas nouvelles. Hempelmann et coll. ont traité en 1952 des méthodes d'analyse à partir du ^{24}Na [15]. Hurst et coll. [17, 18] ainsi qu'Auxier [2] ont fait une étude approfondie de ces analyses par activation et ces méthodes ont

1. Le CIR associe les moyens diagnostiques et thérapeutiques du SCPRI, de l'Institut Curie, du Commissariat à l'énergie atomique, du Service de santé des armées et de quelques hôpitaux civils.

déjà été utilisées lors d'un certain nombre d'accidents, par exemple celui du laboratoire de Los Alamos en 1956 [19] ou celui de Mol en 1975 [22]. Chanteur et coll., dès 1960 [6-8], se sont penchés sur ces méthodes dans le cadre d'une dosimétrie biologique avec localisation autoradiographique. Estournel et coll. en 1966 ont développé une méthode d'évaluation rapide de la dose neutrons à la suite d'un accident de criticité par la mesure du ^{32}P [13].

Pour une revue de toutes les méthodes dosimétriques utilisables en cas d'accident de criticité, voir les articles de Delafield [10-11] et Holt [16] sur les détecteurs à activation (détecteurs passifs).

II. PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

1. La cible

Les phanères de l'homme, cheveux et poils, sont très intéressants compte tenu de leur teneur constante en ^{32}S . Cette caractéristique est commune aux phanères des mammifères. Nous avons déjà utilisé ces détecteurs à seuil dans les expérimentations menées sur des porcs (soies du porc) en vue de la détermination de la DL50/30 en fluence mixte neutron/gamma. Nous voulions estimer l'hétérogénéité de la composante neutronique "rapide" due à la diffusion des neutrons et à leur gradient d'absorption considérable dans les tissus biologiques afin de déterminer la dose absorbée au sein des territoires hématopoïétiques [4, 20].

Cette teneur en soufre est, en outre, indépendante du sexe et de l'endroit où poussent les phanères ainsi que de leur couleur. Elle est de 3,8 % en poids alors que la teneur en phosphore n'est que de 0,08 %, donc négligeable dans le cadre d'une analyse par activation du ^{32}S en ^{32}P par la réaction nucléaire bien connue $^{32}\text{S}(n, p) ^{32}\text{P}$ [23, 26].

Les cheveux que nous avons utilisés n'avaient subi aucun traitement capillaire (décoloration, teinture, etc.).

D'autres éléments sont présents dans les phanères. Après irradiation neutronique, ils donnent naissance à des radionucléides à vie courte qui n'interfèrent pas avec les mesures du ^{32}P . Nous y reviendrons ultérieurement.

2. Préparation de la cible pour la mesure du ^{32}P

Le ^{32}P décroît avec une période de 14,28 jours en émettant un rayonnement bêta d'énergie maximale de 1,71 MeV. Le rendement de comptage sera donc d'autant meilleur que l'échantillon sera déposé en couche mince. L'activité du ^{32}P a été déterminée au SCPRI par la mesure de l'activité bêta du précipité de phosphate ammoniaco-magnésien obtenu à partir des cheveux minéralisés (prise d'essai : 1 g) après purification chimique.

L'échantillon de cheveu est dissout par de l'acide nitrique 8 N. Après évaporation, le résidu est blanchi par addition d'eau oxygénée (110 volumes) et d'acide nitrique pur. Cette opération est répétée deux à trois fois. Après évaporation à sec, le résidu est repris par de l'acide chlorydrique 0,01 N puis purifié par passage sur une résine cationique (pH 8). Le phosphore est précipité sous forme de phosphate ammoniaco-magnésien en ajoutant au filtrat un mélange magnésien, de l'ammoniaque 8 N en excès et du phosphate tricalcique comme entraîneur de précipitation (pH 8). Cette technique sépare le phosphore de l'échantillon de tous les autres composants éventuellement radioinduits et permet donc un comptage bêta immédiat du seul ^{32}P . La qualité de la séparation chimique fait l'objet d'un contrôle de qualité par des comptages successifs échelonnés dans le temps, compte tenu de la courte période de décroissance du ^{32}P . Après filtration du précipité, celui-ci est compté sous un compteur proportionnel préalablement étalonné dans les mêmes conditions expérimentales (Geiger-Müller à circulation gazeuse d'hélium-isobutane, muni d'un dispositif d'anticoïncidence ; mouvement propre inférieur à 1 coup par minute).

Dans le cas d'une contamination externe associée survenue lors de l'accident il faudrait, dans un premier temps, décontaminer les cheveux de façon à pouvoir mesurer le ^{32}P dans de bonnes conditions. Ceci est survenu au cours de deux accidents. La décontamination des cheveux avait consisté à précipiter alternativement le ^{32}P en présence d'une quantité connue de phosphate "entraîneur", par exemple, le phosphate de zirconium ou le phosphomolybdate d'ammonium, comme l'ont décrit Bonner et Potratz (*in* Petersen [23]).

3. Les sources de neutrons

Les irradiations et les mesures dosimétriques de référence ont été réalisées au Centre d'études du Bouchet. Deux sources de rayonnement neutronique ont été choisies : une source de rayonnement de haute énergie quasi-monoénergétique et une source de fission perturbée.

3.1. Source de rayonnement quasi-monoénergétique

Il s'agit de l'accélérateur électrostatique du Centre d'études du Bouchet implanté à Arcueil. Cette machine peut délivrer un courant de deutons de 5 mA sous une tension maximale d'accélération de 400 kV. En utilisant la réaction de fusion deutérium-tritium, il est possible d'obtenir 5.10^{11} neutrons de "14 MeV" dans 4π stéradians par seconde en utilisant une cible de titane tritié déposé sur un support en cuivre. Afin de pouvoir dissiper la quantité de chaleur délivrée pour éviter la désorption du tritium et augmenter ainsi la durée de vie de la cible, un porte cible tournant est utilisé. Ce porte cible fabriqué en acier inoxydable perturbe de façon non négligeable le spectre neutronique qui ne peut plus alors être considéré comme rigoureusement monoénergétique. Ce spectre différentiel par bandes d'énergie des neutrons a été évalué par calcul et mesuré par spectrométrie neutronique. En raison de l'excellent accord entre le calcul et les mesures expérimentales, le spectre calculé a été pris comme référence et utilisé par la suite pour la

détermination des sections efficaces nécessaires aux calculs de dose ou d'activation (fig. 1). Par contre, la production de neutrons a été étalonnée en terme de kerma tissu et non en fluence [5].

Fig. 1 – Spectre des neutrons de 14 MeV (cible tournante), accélérateur 400 kV, réaction d-T.

Les échantillons de cheveux (5 g) ont été irradiés dans des sachets de polyéthylène à une distance de 20 cm dans l'axe du faisceau pendant des durées allant de 200 à 4 000 s. Les conditions exactes d'irradiation sont données dans le tableau I.

3.2. Source de fission perturbée

Le réacteur SILENE [3] du CE-Valduc a été utilisé pour cette deuxième partie de l'expérience. Il s'agit d'un réacteur à cœur liquide constitué d'une solution de nitrate d'uranyle (uranium enrichi à 93 % en ^{235}U). C'est une source intense de rayonnements mixtes neutron et gamma conçue dans le souci d'offrir aux expérimentateurs le maximum de possibilités en jouant à la fois sur le mode de production de l'excursion de puissance et sur les caractéristiques des rayonnements émis par l'interposition d'écrans. Le réacteur est placé dans une enceinte de béton rectangulaire de 19,10 m de long sur 12,10 m de large, à 7,71 m du petit côté (vers le sas) et 5,85 m du grand côté (toujours vers le sas). Le plan médian du réacteur est à 1,2 m du sol. La hauteur du plafond est de 10 m.

TABLEAU I
Conditions expérimentales de l'irradiation aux neutrons de 14 MeV

Accélérateur : 400 kV – 1 mA		
Dose (cGy)	Durée (s)	Moniteur (Np)
Date de l'irradiation : 30 janvier 1991		
53	359	60 294
105	712	120 133
158	1 037	180 095
210	1 503	240 144
263	1 725	300 103
316	2 293	360 128
Date de l'irradiation : 25 février 1991		
26	241	29 991
79	670	90 182
132	1 323	150 127
184	1 584	210 064
237	2 143	270 032
Date de l'irradiation : 26 février 1991		
289	2 583	330 064
368	2 313	420 035
Date de l'irradiation : 27 février 1991		
421	3 252	479 978
473	4 058	540 002
526	3 887	600 140

Pour cette expérience, la configuration était celle avec écran de plomb (10 cm). Cette configuration permet d'obtenir des rapports "neutron/ gamma" (N/G) élevés (par exemple $N/G = 6$ à 3 m) et un abaissement de la valeur moyenne de l'énergie du spectre. La libre évolution a été choisie comme mode de fonctionnement car elle permet d'obtenir des doses élevées en des intervalles de temps très courts. Lors de cette expérience, $1,01 \cdot 10^{17}$ fissions ont été produites. Les doses par fission aux diverses distances sur l'axe 75 degrés ont été mesurées par deux méthodes, la méthode des deux chambres (l'une sensible aux deux types de rayonnement, l'autre seulement sensible au rayonnement gamma) et la méthode des chambres à fission, principalement une chambre contenant un dépôt de ^{237}Np . Le ^{237}Np possède la caractéristique très intéressante d'avoir une réponse en dose quasi invariante en fonction du spectre neutronique [12]. Lors de l'irradia-

tion, les doses ont été contrôlées par des diodes au silicium (PIN) [25] lues en chute de tension directe. Le rapport entre le kerma-tissu et le kerma-déplacement silicium est lui aussi un quasi invariant du spectre. Le tableau II résume les conditions expérimentales.

TABLEAU II
Réacteur SILENE : conditions expérimentales

Date de l'irradiation : 27 mars 1991	
Nombre de fissions : $1,01.10^{17}$	
Durée de l'irradiation : environ 1 min	
Hauteur des échantillons au-dessus du sol : 1,2 m	
Support : plaque d'aluminium mince	
Conditionnement : sachet de polyéthylène contenant 5 g de cheveux	
Distance (m)	Dose (cGy)
1,5	786
2	456
2,5	301
3	215
3,5	162
4	128
5	86
7	48

Le spectre neutronique produit par la source SILENE avec écran de plomb a également fait l'objet d'une estimation théorique. Le calcul prend en compte le spectre des rayonnements issus directement de la source mais également du spectre des neutrons diffusés par les parois de la salle. Il a été calculé à 1 ; 1,5 ; 3 ; 4 et 8 m de la source (fig. 2).

4. Détermination du flux neutronique, estimation de la dose absorbée

La production d'un radionucléide à partir d'une fluence neutronique adaptée peut s'écrire :

C'est la production de N_1 , à savoir la production du ^{32}P , qui nous intéresse ici. Il est produit au rythme k mais se désintègre en ^{32}S au rythme k_1 . A tout moment, la variation de N_1 est égale à la différence entre le nombre total d'atomes formés pendant l'intervalle de temps d_t et le nombre de désintégrations radioactives qui se sont produites pendant ce même intervalle de temps d_t :

$$d_{N_1} = k d_t - k_1 N_1 d_t$$

Fig. 2 – Evolution du spectre de neutrons de SILENE en fonction de la distance. Ecran de plomb pour $1,69 \cdot 10^{17}$ fissions.

S'il n'existe pas d'atomes N_1 au temps zéro, l'intégration de cette équation différentielle conduit à la formule 1 :

$$N_1 = k/k_1 (1 - e^{-k_1 T_i})$$

T_i : temps d'irradiation

Le nombre d'atomes formés augmente donc avec le temps jusqu'à un maximum égal à $N_{1\max} = k/k_1$

Soit T la période du ^{32}P , quand $T_i \ll T$, on peut écrire par approximation :

$$e^{-k_1 T_i} = 1 - k_1 T_i$$

$$\text{et donc } N_1 = k T_i \quad (T_i \ll T)$$

Si l'on prend comme unité de temps la période de N_1 , l'équation 1 devient :

$$N_1 = N_{1\max} (1 - 2^a)$$

avec $a = -T_i/T$

Cette dernière équation montre que l'irradiation pendant une période conduit à la formation d'une quantité de produit égale à la moitié du maximum possible.

Pour une cible mince à travers laquelle le flux initial n'est pas sensiblement réduit :

$$k = F \sigma N_t$$

avec F : flux de neutrons ($\text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

σ : section efficace de la réaction nucléaire (m^2)

N_t : nombre d'atomes cibles (^{32}S)

Si A_1 est l'activité au temps 0 (fin de l'irradiation) :

$$A_1 = k_1 N_1 = k_1 F \sigma Ti N_t$$

Le flux de neutrons qui a donné naissance à l'activité A_1 est donc égal à :

$$F = A_1/k_1 \sigma Ti N_t$$

III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Ils sont consignés dans les tableaux III en ce qui concerne les neutrons de 14 MeV et IV et VIII pour ce qui est de l'irradiation à partir des neutrons du réacteur pulsé SILENE. Ils montrent clairement qu'ils sont le résultat de "détecteurs à seuil" et sont donc sujets aux restrictions inhérentes à ce genre de détecteur.

TABLEAU III
Neutrons de 14 MeV

Dose (cGy)		Activité ³² P(Bq/g) à la date du :						
		30/1/91	12/2/91	14/2/91	19/2/91	21/2/91	23/2/91	26/2/91
	Act.	σ						
53	0,59	0,03	7,30	6,65	5,03	4,85	4,38	3,52
105	1,18	0,04	13,98	12,66	10,13	9,41	8,31	6,75
158	1,56	0,04	18,25	16,44	13,39	11,80	10,50	9,02
210	2,58	0,05	30,78	28,28	21,97	19,19	18,43	15,69
263	2,98	0,05	35,94	32,28	24,79	22,50	21,00	18,79
316	3,91	0,03						
Deuxième série								
			25/2/91					
26	0,32	0,013						
79	0,90	0,019						
132	1,70	0,026						
184	2,20	0,029						
237	2,20	0,034						
			26/2/91					
289	3,10	0,033						
368	4,00	0,044						
			27/2/91					
421	3,60	0,041						
473	4,50	0,045						
526	5,70	0,051						

IV. INTERPRÉTATION ET COMMENTAIRES

1. Relations entre l'activité du ^{32}P et la dose

Elles sont linéaires comme la théorie le prévoit dès lors que demeurent suffisamment d'atomes cibles (fig. 3).

Fig. 3 – Relations dose-effet théorique et expérimentale, droites de régression.

Les paramètres des droites de régression calculées à partir des points expérimentaux sont les suivants ($y = a + bx$) :

	Neutrons 14 MeV	Neutrons SILENE
a	0,165	- 0,035
écart-type de a	0,33	0,070
b	$99,6 \cdot 10^{-4}$	$44,0 \cdot 10^{-4}$
écart-type de b	$5,2 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$
intervalle de confiance		
95 % de b	$(110,7-88,5 \cdot 10^{-4})$	$(47,1-41,9 \cdot 10^{-4})$
coefficient régression	0,98	0,99
nombre de données	17	9
degrés de liberté	15	7

On constate aisément que les coefficients b (pentes des droites de régression) sont hautement significatifs ($p < 0,01$) alors que les coefficients a ne le sont pas, les droites de régression passent par $x = y = 0$.

La valeur numérique de la pente de la droite de régression calculée à partir des données de SILENE est inférieure de plus de la moitié à celle correspondant aux neutrons de 14 MeV. Ceci résulte du fait que leurs spectres énergétiques sont très différents.

Quant aux données correspondant à la décroissance radioactive (tableaux III et IV), elles conduisent à des périodes comprises entre 15,19 et 14,20 jours, donc non significativement différentes de la période du ^{32}P , à savoir 14,28 jours (plus ou moins 0,02 jour).

TABLEAU IV
Irradiation aux neutrons du réacteur SILENE (27/3/1991, mesures : 12/4/91)

Distance (m)	Dose (cGy)	Activité ^{32}P (Bq/g)	
		12/4/91	27/3/91
1,5	732	1,44 ± 0,02	3,13
2,0	424	0,91 ± 0,015	1,98
2,5	281	0,56 ± 0,012	1,22
3,0	203	0,36 ± 0,010	0,78
3,5	154	0,29 ± 0,009	0,63
4,0	119	0,21 ± 0,008	0,46
5,0	81	0,14 ± 0,007	0,30
7,0	45	0,080 ± 0,006	0,17

2. Comparaison expérience et calcul théorique

Le calcul de l'activité du ^{32}P contenu dans 1 g de cheveux après irradiation est donnée par la formule :

$$\text{Activité} = \lambda \times N \times \sigma \times \varphi$$

$$\lambda = 5,618.10^{-7}\text{s}^{-1}$$

$$N = \text{Nombre de noyaux cible} = 6,022.10^{23} \times (1/32) \times 0,95 \times 0,038$$

(abondance isotopique et composition stoechiométrique)

$$N = 6,798.10^{20}$$

$$\varphi = \text{fluence neutronique (n.cm}^{-2}\text{)}$$

$$\sigma = \text{section efficace moyenne (cm}^2\text{)}.$$

Il faut donc connaître la fluence neutronique φ et la section efficace moyenne de la réaction nucléaire $^{32}\text{S}(n, p) ^{32}\text{P}$. φ est calculé à partir des doses mesurées par l'intermédiaire du coefficient "kerma tissu" moyen évalué au moyen des spectres théoriques. Il en est de même pour la

section efficace moyenne. Les données de base sont extraites de la bibliothèque américaine DLC31. Les valeurs prises en considération sont résumées dans le tableau V.

TABLEAU V
Valeurs théoriques retenues dans les calculs

Données 14 MeV SILENE (écran de plomb)					
Distance	1 m	1,5 m	3 m	4 m	8 m
Kerma (cGy.n ⁻¹ .cm ⁻²)	5,94.10 ⁻⁹	1,2.10 ⁻⁹	7,86.10 ⁻¹⁰	7,09.10 ⁻¹⁰	4,6110.10 ⁻¹⁰
σ (barn)	0,203	1,57.10 ⁻²	8,13.10 ⁻¹⁰	6,69.10 ⁻³	3,55.10 ⁻³
Fluence (*) (n.cm ⁻²)	1,68.10 ⁸	8,33.10 ⁸	1,27.10 ⁹	1,41.10 ⁹	2,17.10 ⁹

(*) : Fluence pour obtenir 1 cGy.

Les tableaux VI et VII comparent les résultats de la détermination théorique des activités du ³²P avec les données expérimentales. Le calcul et l'expérience sont en très bon accord en ce qui concerne les irradiations faites auprès du réacteur SILENE. L'écart atteint 19 % pour les valeurs aux points les plus proches et les plus éloignés du réacteur. Mais ces valeurs calculées ont nécessité des extrapolations pour le calcul du kerma moyen et de la section efficace moyenne. Ceci peut expliquer l'augmentation des écarts aux points extrêmes. Pour les autres points, l'écart ne dépasse pas 5 %, écart qui est certainement contenu dans l'intervalle d'incertitude tant du calcul que de l'expérience.

TABLEAU VI
SILENE – écran de plomb

Distance (m)	Dose (cGy)	Kerma (cGy.n ⁻¹ .cm ⁻²)		Fluence n.cm ⁻²	Activité du ³² P calculée mesurée (c) (m)		Rapport (c)/(m)
		*10E-9	*10E-11	*10E-3	*10E-3	*10E-3	
1,5	786	1,1	7,3	13,30	4,74	3,98	1,19
2,0	456	0,96	4,7	11,28	4,48	4,34	1,03
2,5	301	0,87	3,5	9,65	4,23	4,06	1,04
3,0	215	0,78	2,8	8,38	4,10	3,63	1,13
3,5	162	0,74	2,2	7,40	3,81	3,88	0,98
4,0	128	0,70	1,8	6,61	3,60	3,60	1,00
5,0	86	0,60	1,4	5,44	3,46	3,48	0,99
7,0	48	0,50	0,97	4,02	3,06	3,51	0,87

(C) et (m) : activité du ³²P exprimée en Bq.cGy⁻¹.g⁻¹.

TABLEAU VII
Neutrons de "14 MeV"

Dose (cGy)	Activité du ³² P		Rapport e/c	Activité expérimentale (Bq.g ⁻¹ .cGy ⁻¹)
	expérimentale (Bq.g ⁻¹) (e)	calculée (Bq.g ⁻¹) (c)		
26	0,32	0,34	0,94	1,23 · 10 ⁻²
53	0,69	0,87	1,13	1,13 · 10 ⁻²
79	0,90	1,03	0,87	1,14 · 10 ⁻²
105	1,18	1,37	0,86	1,12 · 10 ⁻²
132	1,70	1,72	0,99	1,29 · 10 ⁻²
158	1,58	2,06	0,77	1,00 · 10 ⁻²
184	2,20	2,40	0,92	1,20 · 10 ⁻²
210	2,58	2,74	0,94	1,23 · 10 ⁻²
237	2,20	3,09	0,71	0,93 · 10 ⁻²
263	2,98	3,43	0,87	1,13 · 10 ⁻²
289	3,10	3,77	0,82	1,07 · 10 ⁻²
368	4,00	4,80	0,83	1,09 · 10 ⁻²
421	3,60	5,49	0,66	0,86 · 10 ⁻²
473	4,50	6,17	0,73	0,95 · 10 ⁻²
526	5,70	6,87	0,83	1,08 · 10 ⁻²

Valeur moyenne expérimentale de l'activité (Bq.g⁻¹.cGy⁻¹) : 1,1 ± 0,1.10⁻².

Valeur moyenne calculée de l'activité (Bq.g⁻¹.cGy⁻¹) : 1,31.10⁻².

Pour les neutrons de 14 MeV la situation est différente. Les valeurs expérimentales sont plus dispersées et la corrélation entre dose et activité n'est pas aussi forte. Mais les conditions expérimentales sont différentes car, à l'inverse de SILENE, les échantillons ont été exposés en plusieurs lots. D'autre part, il y a un écart de 19 % entre les valeurs moyennes d'activité en Bq.g⁻¹.cGy⁻¹ calculées et mesurées. Les mesures d'activité ne semblent pas globalement en cause. Par contre, les valeurs de dose semblent un peu élevées et l'étalonnage de l'accélérateur doit être vérifié.

Il faut également souligner l'écart important concernant les activités par gramme et par centigray pour deux spectres neutroniques d'énergie moyenne très différente. L'observation des sections efficaces moyennes permettait de prévoir ce phénomène bien que, pour une évaluation en dose, ce soit le rapport "section efficace moyenne/kerma tissu moyen"

qui intervienne. Il faut en conclure, évidemment, que la détermination de la dose par la mesure de l'activation du ^{32}S est soumise à la connaissance préalable du spectre énergétique neutronique. Dans le cas de SILENE, d'autres configurations pourraient être étudiées, par exemple SILENE sans écran ou avec écran de fer ou de béton.

3. Détermination d'éléments activés de période courte

Sans radiochimie préalable, la détermination de l'activité du ^{32}P ne pourrait se faire qu'après un temps d'attente de 48 h. Dans l'intervalle, un certain nombre d'éléments émetteurs bêta à période courte sont présents et ont fait l'objet d'une première tentative d'identification.

Après une irradiation à 150 cGy de neutrons de 14 MeV, des échantillons ont été soit examinés en spectrométrie gamma, soit comptés immédiatement à l'aide d'un compteur Geiger-Müller. Ceci a permis de mettre en évidence une réaction $n, 2n$ sur ^{63}Cu de 9,4 min de période et une réaction $n, ^4\text{He}$ sur le ^{31}P de 2,37 min de période. Deux autres émetteurs bêta moins de période 3,6 h et 3,5 j ont été décelés sans pouvoir être identifiés. Tous ces résultats sont très approximatifs et l'expérience doit être reprise auprès du réacteur SILENE afin de pouvoir accéder à des temps d'irradiation courts et à des doses plus élevées.

4. Quantité de cheveux nécessaires et sensibilité de la méthode

Les quantités minimales de cheveux nécessaires pour obtenir après traitement radiochimique un comptage dont la précision est au moins égale à 20 % sont fonction de la fluence, donc de la dose absorbée : 250 mg pour 0,5 Gy, 40 mg pour 3 Gy pour deux comptages de 50 min.

5. Irradiation des cheveux à l'air libre ou sur fantôme

On pouvait se demander si le fait d'exposer les cheveux à l'air libre n'altérerait pas quelque peu la réponse puisqu'ils sont naturellement appliqués sur la peau. Pour s'affranchir éventuellement de cette contrainte, nous avons réalisé auprès du réacteur SILENE une irradiation de cheveux appliqués sur un mannequin anthropomorphe équivalent tissu afin de la comparer aux expositions précédentes réalisées à l'air libre.

Le réacteur fonctionnait en libre évolution avec écran de plomb ($2,8 \cdot 10^{17}$ fissions à 10 % près). La distance au réacteur de la face avant du mannequin était de 3,5 m, la distance de référence ("midline air dose" de 3,6 m). Le mannequin était un fantôme "Plastinaut". Les sachets de cheveux avaient été placés sur la tête, la poitrine ou le pubis. Les doses neutron étaient contrôlées en ces points par des diodes PIN Harshaw (deux diodes par point). La dose de référence à l'air libre était de 4,49 Gy alors que le facteur d'étalonnage pour les cheveux exprimé en $\text{Bq} \cdot \text{cGy}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$ était de $3,88 \cdot 10^{-3}$ (cf. expérience à l'air libre).

Les écarts constatés entre les irradiations à l'air libre et sur mannequin (tableau VIII) diffèrent de 10 à 29 %, ce qui est acceptable pour le but poursuivi, compte tenu des autres incertitudes.

TABLEAU VIII
Irradiation des cheveux sur "Plastinaut"

Position	Activité cheveux (Bq)	Dose cheveux (Gy)	Dose diode (Gy)	Ecart %	
				à dose diode	à dose air libre (a)
Tête	1,57	3,49	3,64	4	29
Poitrine	1,83	4,08	4,17	2	10
Pubis	1,83	4,08	4,65	12	10

a : Dose de référence à l'air libre = 4,49 Gy.

V. CONCLUSION

La réaction nucléaire $^{32}\text{S}(n, p) ^{32}\text{P}$ au sein des phanères humaines signe de manière absolue la présence de neutrons rapides au sein de la fluence particulaire incidente (seuil efficace de détection : 3,3 MeV [10]). Cette réaction nucléaire est insensible au débit de fluence et fonctionne comme un dosimètre intégrateur de flux. L'individu surexposé devient son propre dosimètre et aucune hypothèse n'est nécessaire pour reconstituer le scénario de l'accident (durée de l'exposition, position respective dans la pièce, écrans interposés, etc.). Cependant, si la fluence thermique devient très importante, la présence – même minime de ^{31}P – peut contribuer de façon non négligeable à la création de ^{32}P comme nous essaierons de le montrer dans un travail ultérieur.

Le rendement de cette réaction nucléaire dépend de la nature du spectre neutronique incident puisque la section efficace d'interaction varie avec l'énergie des neutrons. Cette méthode d'analyse par activation permet d'estimer les fluences neutroniques aux points de mesure (neutrons d'énergie supérieure ou égale à 2,5 MeV : seuil efficace de détection 3,3 MeV [10]) et, par le calcul, d'estimer des doses absorbées de l'ordre de quelques dizaines de milligray dans la mesure ou l'on connaît la nature du spectre des neutrons incidents comme le montrent très bien les relations dose-effet obtenues auprès du réacteur pulsé SILENE ou aux neutrons de 14 MeV (fig. 3).

La connaissance du rapport neutron/gamma, si l'on y a accès, permet alors de remonter à la dose totale "neutron + gamma" car les fluences neutroniques "pures" n'existent pas.

Comme sur un individu de "pilosité moyenne", il est possible de faire des prélèvements sur différentes parties du corps (cheveux, barbe, pubis, poitrine) compte tenu des faibles quantités de phanères nécessaires pour réaliser une bonne mesure (de précision supérieure à 20 %) il devient possible de déceler l'hétérogénéité de l'exposition, donc de déterminer le vecteur directeur de la fluence incidente. Les mesures effectuées sur les phanères de l'accidenté du réacteur Vénus à Mol [21] en sont une belle illustration.

Nous avons vérifié, par ailleurs, que la présence de la peau sur laquelle sont naturellement implantées les phanères ne perturbe pas la fluence incidente de manière significative de sorte qu'il devient très facile de réaliser au laboratoire des relations dose-effet étalons sur cette réaction à l'image de ce qui est réalisé en "dosimétrie biologique" notamment pour les aberrations chromosomiques.

Ces mesures associées à la mesure du ^{24}Na [9, 13] qui signe l'exposition aux neutrons "lents" peuvent être effectuées en moins de 24 h dans le cadre d'une "dosimétrie opérationnelle". Elles permettent de se faire rapidement une idée objective de l'ampleur de l'exposition et de son éventuelle hétérogénéité en présence d'une composante non négligeable de neutrons "rapides". Cependant, dans les conditions qui prévalent lors de situations accidentelles, il est souvent difficile de connaître avec précision le spectre énergétique des neutrons incidents de sorte que l'interprétation correcte des mesures d'activation ne peut se faire qu'après une reconstitution dosimétrique de l'accident.

La validité de l'estimation de la dose absorbée déterminée par activation sera, plus tard, confortée par le résultat de toutes les autres méthodes utilisables et notamment par la mesure du nombre des aberrations chromosomiques par cellule et celle résultant de la quantification de la perturbation des tracés électro-encéphalographiques.

Cette dosimétrie par activation est utilisée en routine chez tous les travailleurs du nucléaire potentiellement exposés à un accident de criticité. Le Commissariat à l'énergie atomique a, en effet, développé des dosimètres de criticité et notamment une "ceinture de criticité" portée autour de la taille et dont l'élément activable est le ^{32}S . Cette ceinture non seulement décèle la présence des neutrons rapides mais permet aussi de reconstituer le vecteur directeur de la fluence.

Remarquons enfin qu'un certain nombre d'objets portés par l'accidenté permettent parfois d'estimer la dose neutron absorbée en cas d'accident de surexposition comme Swaja [27] et Hashizume [14] viennent récemment de le rappeler. ■

RÉFÉRENCES

- [1] AIEA. – Dosimetry for criticality accidents, a manual (Technical report series, n° 211). Vienne : AIEA, 1982, 196 p.
- [2] AUXIER J.A. – Dosimetric considerations in criticality exposures. *In : Diagnosis and treatment of acute radiation injury*, Genève, 17-21 oct. 1960. Genève : OMS, 1961, 141-150.
- [3] BARBRY F. – SILENE, a typical solution fueled research reactor. International symposium on the use and development of low and medium flux research reactors, MIT, Cambridge, USA, 1983.
- [4] BERAUD-SUDREAU E. – Distribution des doses gamma et neutron en fantômes. Thèse troisième cycle, Université Paris-Sud, Orsay, 11 juin 1982.
- [5] BUISSON A. DHERMAIN J. – Etalonnage en dose neutron et gamma du générateur 400 kV. Centre d'étude du Bouchet, rapport (à paraître).
- [6] CHANTEUR J., PELLERIN P. – Localizing by autoradiography at – 195 °C radioactive areas in rats exposed to a high flux of thermal neutrons. Importance of phosphorus 32 in consecutive internal irradiation. *Nature*, 1960, 187 (4736), 472-475.
- [7] CHANTEUR J., PELLERIN P., ARNAUD Y. – Méthode de mesure biologique des doses en neutrons thermiques et rapides absorbées par un organisme vivant. *In : Biological effects of neutron and proton irradiations*, Upton, 7-11 Oct. 1962. Vienne : AIEA, 1964, Vol. 1, 157-165.
- [8] CHANTEUR J. ARNAUD Y., PELLERIN P. – Dosimétrie biologique après exposition à un flux élevé de neutrons thermiques et rapides. *In : Personnel dosimetry for radiation accidents*, Vienna, 8-12 March 1965. Vienne : AIEA, 1965, 235-250.
- [9] CROSS W.G., ING H. – Sodium activation in the human body. *Radiat. Prot. Dosim.*, 1985, 10 (1/4) 265-276.
- [10] DELAFIELD H.J. – Nuclear accident dosimetry. *Radiat. Prot. Dosim.*, 1985, 10 (1/4), 237-249.
- [11] DELAFIELD H.J. – Nuclear accident dosimetry, an overview. *Radiat. Prot. Dosim.*, 1988, 23 (1/4) 143-149.
- [12] DETROUSSEL P. – Etalonnage et exploitation des mesures des chambres à fission ^{238}U , $^{235}\text{U}/^{10}\text{B}$, ^{237}Np , ^{239}Pu . Rapport ETCA 2461/DPN/ER, Arcueil, 1983.
- [13] ESTOURNEL R., HENRY P., BEAU P., ERGAS A. – Evaluation rapide de la dose de neutrons à la suite d'un accident de criticité par mesure de l'activité de ^{24}Na . Rapport CEA-R-3083, 1966.
- [14] HASHIZUME T., KATO Y., NAKAJIMA T. – Dose estimation of non-occupational persons accidentally exposed to ^{192}Ir gamma-rays. *J. Radiat. Res.*, 1973, 14, 320-327.
- [15] HEMPELMANN L.H., LISCO H., HOFFMAN J.G. – The acute radiation syndrome : a study of nine cases and a review of the problem. *Ann. Int. Med.*, 1952, 36, 279-510.
- [16] HOLT P.D. – Passive detectors for neutron fluence measurement. *Radiat. Prot. Dosim.*, 1985, 10 (1/4) 251-264.
- [17] HURST G.S., HARTER J.A., HENSLEY P.N., MILLS W.A., SLATER M., REINHARDT P.W. – Techniques of measuring neutron spectra with threshold detectors-tissue dose determination. *Rev. Sci. Instrum.*, 1956, 27 (3) 153-156.
- [18] HURST G.S., RITCHIE R.H., EMERSON L.C. – Accidental radiation excursion at the Oak-Ridge Y-12 plant – III. Determination of radiation doses. *Health Phys.*, 1959, 2 (2) 121-133.

- [19] LANGHAM W.H. – Special studies, Section-V. J. Occup. Med., 1961, 3, 169-177.
- [20] LEMAIRE G., MAAS J. – Irradiation unilatérale du porc en fluence mixte neutron-gamma, premiers résultats. Rapport CEA-N-2307, 1982.
- [21] PARMENTIER N.C., BOULENGER R., PORTAL G. – Problèmes de dosimétrie lors de l'accident de criticité survenu au réacteur Vénus à Mol, en date du 30-12-1965. In : *Proceedings of the 1st International congress of radiation protection*, Roma, 5-10 September 1966. Oxford : Pergamon Press, 1968, vol. 2, 1231-1248.
- [22] PARMENTIER N.C., NENOT J.C., JAMMET H.J. – A dosimetry study of the Belgian (1965) and Italian (1975) accidents. In : *The medical basis for radiation accident preparedness*, Oak Ridge, 18-20 Oct, 1979 (HUBNER K.F., FRY S.A., Eds.). New York : Elsevier, 1980, 105-112.
- [23] PETERSON D.F. – Rapid estimation of fast-neutron doses following radiation exposure in criticality accidents : the $^{32}\text{S}(n, p) ^{32}\text{P}$ reaction in body hair. In : *Personnal dosimetry for radiation accidents*, Vienna, 8-12 March 1965. Vienne AIEA, 1965, 217-233.
- [24] RODRIGUES DE OLIVEIRA A. – Un répertoire des accidents radiologiques 1945-1985. Radioprotection, 1987, 22, 89-135.
- [25] SERBAT A. – Modifications du spectre neutronique du réacteur SILENE, influence sur la répartition des doses dans un mannequin. Arcueil, Centre d'Etude du Bouchet (Rapport à paraître).
- [26] SPECTOR W.S. – Handbook of biological data. Philadelphia : W.B. Saunders, 1961, p. 77.
- [27] SWAJA R.E., OYAN R. – Uncertainties associated with using quick-sort techniques to estimate neutron doses following criticality accidents. Health Phys., 1987, 52 (1) 65-68.