

ARTICLE

État des lieux en France des rejets radioactifs gazeux émis par les installations détenant un cyclotron

A. Cordelle*, S. Van Ryckeghem et A. Fallot

IRSN, PSE-Santé, SER, UES, Fontenay-aux-Roses, France.

Reçu le 12 juin 2017 / Accepté le 14 septembre 2017

Résumé – Cette étude concerne les effluents gazeux émis par les installations de fabrication de radionucléides au moyen d'un cyclotron. Un questionnaire élaboré par l'IRSN/UES a été envoyé aux 34 établissements situés en France entrant dans le cadre de cette étude. À partir des réponses apportées par les exploitants, l'IRSN a réalisé en 2015 un état des lieux en France des rejets radioactifs gazeux émis par ces installations. L'objectif de cet article est de présenter une partie des résultats et statistiques obtenus, regroupés en trois thèmes principaux : les caractéristiques de production des radionucléides, les moyens de limitation des rejets mis en place et les moyens de mesure et de suivi des effluents gazeux radioactifs rejetés.

Abstract – **Assessment of gaseous radioactive releases emitted by facilities using a cyclotron in France.** This study concerns the gaseous radioactive effluents released by radionuclides production facilities using cyclotrons. It is based on a survey involving 34 French facilities. IRSN used the replies from the operators to the questionnaire in the survey to establish in 2015 the state of play in France on gaseous radioactive effluents released by these facilities. The purpose of this article is to present a part of the results and statistics grouped into three main themes: the radionuclides production characteristics, the gaseous radioactive releases reduction and their monitoring.

Keywords: cyclotron / gaseous radioactive release / releases reduction / releases monitoring

1 Introduction

Sur le territoire français et principalement en zone urbaine, il existe à ce jour une trentaine d'installations équipées de cyclotrons et de laboratoires de synthèse. Ces installations sont destinées à la fabrication de radio-pharmaceutiques contenant des émetteurs de positons, utilisés dans le milieu médical en association avec des caméras TEP (tomographie par émission de positons). En raison de la courte durée de vie de ces radionucléides, les sites de production sont souvent situés à proximité des grands hôpitaux pour permettre leur utilisation immédiate.

Outre la problématique liée à la radioprotection des travailleurs se pose également la question de la protection de la population installée à proximité des sites. Une partie des radionucléides produits est en effet rejetée dans l'environnement sous forme d'effluents gazeux, notamment lors du transfert du contenu de la cible irradiée par le cyclotron vers les

enceintes de synthèse, puis au cours de la synthèse elle-même (Kleck *et al.*, 1991).

L'activité rejetée est très variable d'une installation à l'autre, de quelques MBq à quelques TBq par an pour les installations françaises. Cette variabilité est principalement liée aux radionucléides produits (^{18}F , ^{11}C , ^{15}O ...), aux radio-pharmaceutiques fabriqués (^{18}F FDG, ^{18}F -Choline, ^{18}F -DOPA...), à la forme physico-chimique des radionucléides rejetés ($^{18}\text{F}_2$, $^{18}\text{FCH}_3$, $^{11}\text{CO}_2$, $^{11}\text{CH}_4$, $^{13}\text{N}_2$...), à la fréquence des synthèses (le nombre de synthèses varie d'environ 20 à environ 1000 selon le type d'installation) et au type de dispositif mis en place pour limiter les rejets gazeux.

À la demande de l'ASN (Autorité de sûreté nucléaire), l'IRSN a réalisé en 2015 un état des lieux pour les installations françaises des caractéristiques de production des radionucléides, des moyens de limitation des rejets et des moyens de mesure et de suivi des effluents gazeux radioactifs rejetés. À noter qu'une étude similaire a été menée en Belgique fin 2009 par l'Agence fédérale de contrôle nucléaire (AFCN) (FANC, 2009).

*Auteur de correspondance : anne.cordelle@irsn.fr



Fig. 1. Localisation des établissements détenant un cyclotron en France métropolitaine.

Fig. 1. Location of cyclotron facilities in metropolitan France.

2 Matériel et méthodes

Pour ce faire, un questionnaire a été envoyé aux 34 établissements situés en France entrant dans le cadre de cette étude, exploités par 17 sociétés. Environ 65 % de ces établissements appartiennent au domaine industriel et 35 % au domaine de la recherche.

Les informations suivantes ont été demandées *via* le questionnaire : un descriptif des opérations générant des rejets d'effluents gazeux, incluant les caractéristiques du faisceau et les types de cibles utilisées, les radionucléides et les radiopharmaceutiques produits, la fréquence de synthèse et de rejet, l'estimation de l'activité totale annuelle rejetée à l'émissaire, une description des dispositifs de limitation des rejets mis en place ou en projet d'installation, les caractéristiques et performances des systèmes de détection et de surveillance des rejets d'effluents gazeux aux émissaires de sortie, les moyens de surveillance de l'environnement mis en place et les types d'incidents rencontrés le plus fréquemment.

Trente-trois établissements sur les 34 ont rempli ce questionnaire et l'ont retourné à l'IRSN. Leur localisation en France métropolitaine est présentée sur la [Figure 1](#). L'état des lieux du parc existant en France a ainsi pu être réalisé à partir des réponses apportées par les exploitants.

3 Résultats et discussion

Ce document présente une partie des résultats et statistiques relatifs aux 33 installations mentionnées ci-avant, pour ce qui concerne les caractéristiques de production des radionucléides, les dispositifs de limitation des rejets et les dispositifs de mesure des rejets à l'émissaire.

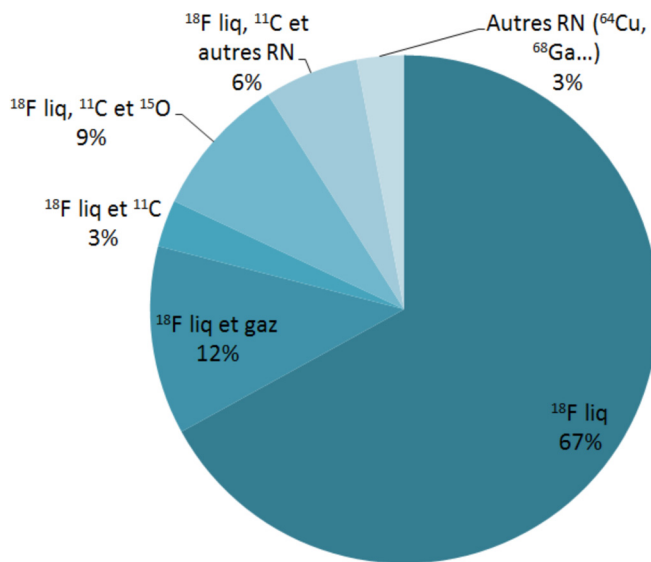


Fig. 2. Caractéristiques de production des radionucléides.

Fig. 2. Characteristics of radionuclides production.

3.1 Caractéristiques de production des radionucléides

Les données recueillies par l'IRSN montrent que pour les 33 installations étudiées, le principal radionucléide produit est le fluor 18, suivi par le carbone 11 et l'oxygène 15 (*cf.* [Fig. 2](#)).

Ces trois radionucléides sont des émetteurs de particules β^+ , dont l'annihilation entraîne l'émission de deux photons de 511 keV dans des directions opposées, à 180° (*cf.* [Fig. 3](#)). Leurs caractéristiques sont rappelées dans le [Tableau 1](#).

La quasi-totalité des installations (97 %) produit du fluor 18 sous forme liquide, qui est essentiellement utilisé pour la fabrication de FDG (fluorodésoxyglucose) ([Guillaume et al., 1990](#) ; [Le Bars, 1998](#) ; [IAEA, 2012](#) ; [Jacobson et al., 2014](#)).

Pour ce qui concerne le nombre de synthèses annuelles réalisées par ces installations, il existe un écart important entre les établissements appartenant au domaine industriel et ceux appartenant au domaine de la recherche (*cf.* [Fig. 4](#)).

Dans le domaine de la recherche, les installations qui produisent uniquement du fluor 18 réalisent entre 24 et 150 synthèses annuelles. Celles qui produisent à la fois du fluor 18 et du carbone 11 réalisent jusqu'à 500 synthèses par an. Dans le domaine de l'industrie, le nombre de synthèses est plus important et varie entre 400 et 1000 par an, pour une production de fluor 18 uniquement.

Une analyse détaillée, pour chaque installation, des paramètres liés au procédé de production et de leur influence sur l'activité rejetée à l'émissaire a notamment montré que :

- l'activité rejetée en cheminée, lorsqu'elle est connue pour chacun des radionucléides produit, augmente bien avec le nombre de synthèses associées à ce radionucléide ;
- pour deux installations dont les paramètres de production et de limitation de rejet sont similaires, la proportion de l'activité rejetée dans l'environnement est plus importante lorsque le fluor 18 est produit sous forme gazeuse que lorsqu'il est produit sous forme liquide ;
- le carbone 11 est le radionucléide qui participe le plus à l'activité rejetée en cheminée, relativement au nombre de

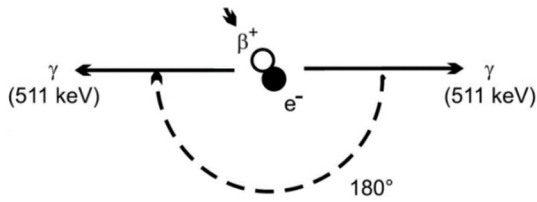


Fig. 3. Annihilation des positons.

Fig. 3. Positron annihilation.

Tableau 1. Caractéristiques des principaux radionucléides produits.
Table 1. Characteristics of the main radionuclides produced.

Radionucléide	Période	Émissions	Émissions
Fluor 18	110 min	511 keV	634 keV
Carbone 11	20 min	511 keV	960 keV
Oxygène 15	2 min	511 keV	1732 keV

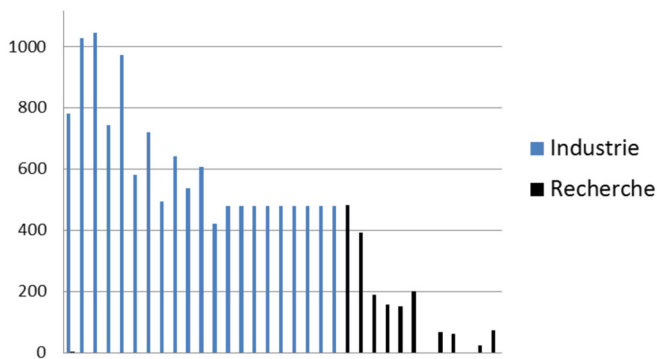


Fig. 4. Nombre de synthèses annuelles.

Fig. 4. Number of annual synthesis.

synthèses réalisées et à l'activité annuelle estimée en sortie de faisceau. En effet, lors d'une synthèse de carbone 11, entre 6 et 10 % de l'activité en sortie de faisceau est rejetée. À titre de comparaison, pour le fluor 18 produit sous forme liquide, moins de 1 % de l'activité entrant dans l'enceinte est rejetée en moyenne à la cheminée lors d'une synthèse ;

- par rapport à la synthèse de la forme la plus classique (FDG), la synthèse d'autres radio-pharmaceutiques (^{18}F -Choline, ^{18}F -DOPA, par exemple) entraîne un rejet plus important à la cheminée.

En plus des radionucléides destinés au domaine radio-pharmaceutique ou à la recherche, des radionucléides non souhaités dits « parasites », tels que l'argon 41 et l'azote 13, sont produits respectivement par activation de l'air et par des réactions secondaires dues à la présence d'oxygène 16 dans la cible (Garnir, 2009 ; Varmenot, 2010 ; Mochizuki *et al.*, 2013 ; Braccini *et al.*, 2014). Toutefois, d'après cette première étude, il semblerait que les radionucléides parasites soient émis dans de faibles proportions par rapport aux radionucléides objets de la production.

De manière générale, il ressort de la présente étude que les formes physico-chimiques des radionucléides rejetés, qui dépendent du type de synthèse réalisé, sont mal connues à ce

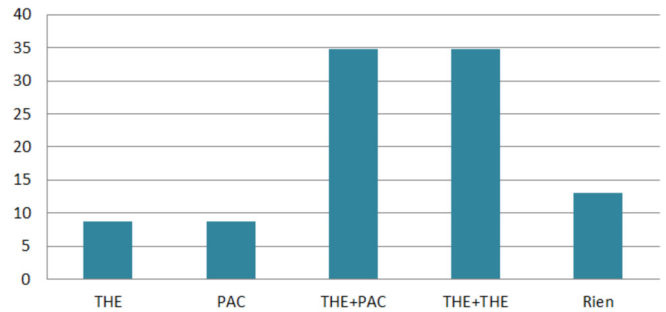


Fig. 5. Répartition (%) des types de filtration sur le réseau d'extraction d'air de la casemate.

Fig. 5. Distribution (%) of trapping types on the air extraction system from cyclotron room.

jour. C'est pourquoi un groupe de travail piloté par l'IRSN et composé d'exploitants français et d'experts de l'IRSN mène actuellement une nouvelle étude qui a pour objectif d'identifier les formes physico-chimiques des radionucléides principaux rejetés lors de la fabrication des radio-pharmaceutiques (irradiation de la cible et processus de synthèse). L'objectif est de pouvoir anticiper le comportement des effluents gazeux jusqu'à leur rejet dans l'environnement (interaction avec les filtres, les matériaux présents...) et d'adapter au mieux les moyens de limitation et de mesure des rejets.

3.2 Dispositifs de limitation des rejets

Des systèmes de limitation des rejets ont été mis en place dans presque toutes les installations, que ce soit au niveau de l'extraction d'air de la casemate du cyclotron ou au niveau de l'extraction d'air des enceintes de synthèse.

Les plus courants sont les filtres de très haute efficacité (THE), destinés à piéger les particules liquides ou solides en suspension dans l'air, et les pièges à charbon (PAC). Ces derniers sont couramment utilisés dans les INB pour piéger les formes gazeuses de l'iode. La problématique est de quantifier leur efficacité pour le piégeage du fluor 18 et du carbone 11, car elle est directement liée à la forme physico-chimique du radionucléide rejeté.

Les Figures 5 et 6 présentent la répartition (en %) dans les installations des différents types de filtration sur les réseaux d'extraction d'air des casemates de cyclotron et des enceintes.

Ces schémas montrent qu'environ 10 % des installations ne disposent d'aucune filtration sur les réseaux d'extraction d'air de la casemate, mais la plupart ont au moins un étage de filtration THE et/ou PAC. La majorité des installations (plus de 80 %) disposent d'au moins une filtration THE et PAC en série sur le réseau d'extraction d'air des enceintes.

Pour ce qui concerne les autres dispositifs de limitation des rejets :

- 78 % des sites possèdent au moins un sac de décroissance de 10 ou 25 litres par enceinte de synthèse. Cela permet de stocker directement dans les enceintes les effluents gazeux émis au cours de la synthèse pendant une vingtaine d'heures, pour permettre la décroissance radioactive de ces effluents. Ceux-ci sont ensuite rejetés dans l'enceinte de synthèse ;

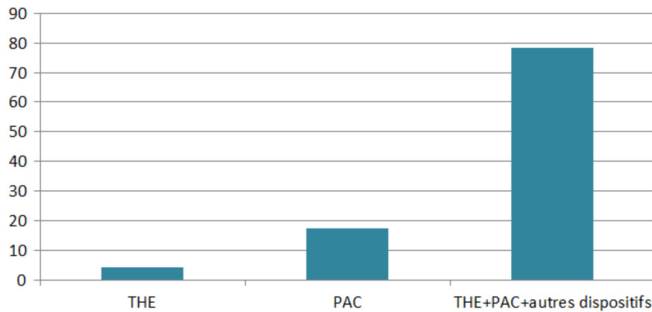


Fig. 6. Répartition (%) des types de filtration sur le réseau d'extraction d'air des enceintes blindées.

Fig. 6. Distribution (%) of trapping types on the hot cell air extraction system.

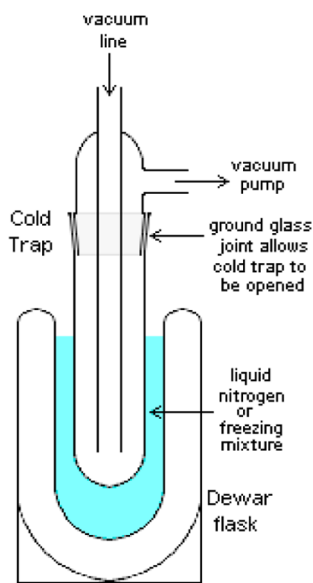


Fig. 7. Système de limitation des rejets par condensation « Cold Trap ».

Fig. 7. System for limiting by condensation gaseous releases (cold trap).

- 43 % des sites utilisent des bouteilles de stockage, permettant de confiner les effluents gazeux à l'extérieur de l'enceinte en attente de leur décroissance. Le volume de ces bouteilles est en grande majorité de 200 litres. Ce dispositif de limitation des rejets n'a pas encore été généralisé à l'ensemble des installations. Toutefois, 24 % des sites non équipés de ce dispositif prévoient de l'installer prochainement ;
- quelques sites ont installé d'autres systèmes de piégeage des effluents gazeux. Par exemple, des cartouches échangeuses d'ions, des lignes à retard ou boucles de décroissance, des pièges froids ou « cold trap » (cf. Fig. 7) permettant de condenser les rejets gazeux en utilisant par exemple de l'azote liquide, des pièges à chaux sodée pour la rétention du carbone 11 gazeux...

Suivant la forme physico-chimique des radionucléides relâchés, l'efficacité des filtrations THE, PAC et autres peut varier (Billard *et al.*, 1966 ; Sharma *et al.*, 1994). Une nouvelle étude aura ainsi pour objectif de quantifier leur efficacité pour

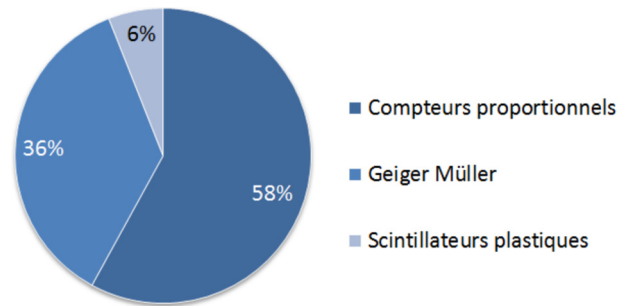


Fig. 8. Types de sondes utilisées.

Fig. 8. Types of detectors used.

les différentes formes physico-chimiques de fluor 18 et de carbone 11 rejetées, qui auront été identifiées par le groupe de travail piloté par l'IRSN sur le sujet. D'autre part, les dispositifs de limitation des rejets autres que les THE et les PAC seront étudiés plus en détail afin d'optimiser et peut-être de généraliser leur utilisation (Calendrino *et al.*, 2007 ; Schweiger, 2011 ; Leach, 2013).

3.3 Dispositifs de mesure des rejets à la cheminée

3.3.1 Méthodes de mesure

Deux grandes méthodes de mesure des effluents radioactifs gazeux sont actuellement mises en œuvre dans les installations :

- la première méthode, utilisée par 64 % des établissements, consiste à mesurer en permanence l'activité volumique des effluents rejetés. Des sondes sont installées au niveau du conduit d'extraction de l'installation ou dans une cuve à distance, afin de fournir un débit de rejet en temps réel et de réaliser un cumul de l'activité effectivement rejetée par l'installation sur la période souhaitée (Klett, 2009) ;
- la deuxième méthode, utilisée par 36 % des établissements, est basée sur l'évaluation ponctuelle des rejets de l'installation lors d'une production ou d'une journée de production (représentative ou maximale). Le résultat est ensuite extrapolé sur une année en tenant compte du nombre de productions annuelles. Les installations qui utilisent cette méthode sont par ailleurs munies de sondes d'alerte (mesure en continu) permettant de signaler rapidement un rejet inhabituel.

3.3.2 Types de sondes utilisées

Le principal type de sondes installé dans les établissements français (cf. Fig. 8) est le compteur proportionnel, dont le principe repose sur l'ionisation du gaz contenu dans le détecteur et dont la réponse est linéaire en fonction de l'énergie de la particule incidente.

Plusieurs modèles sont commercialisés : des détecteurs cylindriques, positionnés à l'intérieur du conduit d'extraction, et des détecteurs parallélépipédiques installés sur le conduit d'extraction ou en dérivation. Lors d'une utilisation en dérivation, un dispositif de prélèvement est connecté au conduit d'extraction principal et permet la mesure en cuve d'un échantillon représentatif.

Le type de rayonnement mesuré (γ et β^+/β^-) dépend en partie du gaz de remplissage de la sonde. Il est par ailleurs possible d'installer à proximité de la sonde de mesure une deuxième sonde, qui sera dédiée à la mesure des rayonnements parasites pour ensuite les soustraire de la mesure globale.

Environ un tiers des établissements en France ont installé une sonde de type Geiger Müller, dont le principe de fonctionnement est le même que celui des compteurs proportionnels, mais dans une plage de tension supérieure. Ce type de sonde est toutefois plus adapté comme moyen d'alerte que comme moyen de mesure.

Enfin, seuls deux établissements utilisent des sondes de type scintillateur plastique, dans lesquels les rayonnements incidents sont convertis en flux lumineux, transformés en charges électriques dans un tube photomultiplicateur. Ce type de sonde est largement utilisé dans d'autres pays pour la mesure des rejets gazeux émis par les installations disposant de cyclotrons. Leur positionnement doit toutefois être défini avec soin, en raison de leur sensibilité aux variations de la température ambiante. Leur limite de détection est de l'ordre de quelques kBq/m³.

Une nouvelle étude de l'IRSN est en cours sur les systèmes de mesure des rejets radioactifs gazeux mis en place dans les installations. Cette nouvelle étude aura pour objectif d'apporter des préconisations sur les types de sondes à mettre en place, de proposer des recommandations sur les conditions d'installation des sondes, en tenant compte de différents paramètres comme le bruit de fond, les conditions de température, l'homogénéité de l'activité volumique dans le conduit..., et de préconiser des méthodes d'enregistrement des données et d'analyse des mesures, en fonctionnement normal et incidentel.

3.3.3 Calibration des sondes

L'IRSN a examiné les valeurs utilisées par les établissements pour le facteur de calibration de la sonde (facteur d'étalonnage).

Ce facteur permet de convertir le nombre de coups par seconde mesuré par la sonde en activité volumique et est propre au type et au modèle de la sonde ainsi qu'au radionucléide mesuré. Il est en général déterminé expérimentalement par le fabricant pour le fluor 18 en laboratoire, dans un caisson fermé. L'ensemble des établissements utilise la valeur communiquée par le fournisseur.

Compte tenu de l'influence de paramètres tels que la température ambiante, le bruit de fond, l'homogénéité et la vitesse du flux, le diamètre du conduit... sur la réponse de la sonde et de l'écart entre les conditions expérimentales dans lesquelles le fabricant détermine le facteur de calibration et les conditions réelles de mesure (flux d'air en dynamique), il est très probable que le facteur de calibration varie d'une installation à une autre pour un même type de sonde, en raison de la géométrie de l'installation et de l'environnement de la sonde.

4 Conclusion

L'objectif de cette première étude, réalisée par l'IRSN avec le concours des exploitants de cyclotrons en France, était

de comprendre et de décrire pour l'ensemble des installations concernées les caractéristiques de production des radionucléides, les dispositifs de limitation des rejets et les dispositifs de mesure à la cheminée actuellement mis en place.

Cet état des lieux permettra par la suite d'harmoniser les pratiques en France, en particulier pour ce qui concerne le choix des dispositifs de mesure et de limitation des rejets.

Trois nouvelles études sont actuellement en cours à l'IRSN.

La première a pour but d'identifier les formes physico-chimiques des radionucléides rejetés lors de l'irradiation des cibles et de la synthèse de radio-pharmaceutiques.

La deuxième a pour but de quantifier l'efficacité des filtres THE et des PAC pour les différentes formes physico-chimiques du fluor 18 et du carbone 11, et d'étudier plus en détail les autres dispositifs existants (bouteilles de stockage, pièges froids...), afin de généraliser le cas échéant leur utilisation.

Ces deux études permettront à terme une diminution de l'activité des effluents radioactifs gazeux rejetés par les installations, par la mise en place des dispositifs de limitation des rejets les plus adaptés au type et à la forme physico-chimique des radionucléides rejetés.

Enfin, la troisième étude en cours a pour objectif de permettre une estimation plus précise de l'activité annuelle rejetée par les installations. Cette étude s'attache en effet à définir les types de sondes les plus adaptés à la mesure des effluents gazeux radioactifs rejetés par ce type d'installation, d'apporter des recommandations sur les conditions d'installation des sondes et de proposer une méthode de détermination des facteurs de calibration dans les conditions réelles d'exploitation.

Références

- Billard F *et al.* 1966. Influence de l'humidité et de la concentration en iode sur l'adsorption de l'iode 131 par les charbons actifs, *Rapport CEA-R 2908*.
- Braccini S *et al.* 2014. Study of the radioactivity induced in air by a 15-MeV proton beam, *Radiat. Prot. Dosim.* 163(3): 269–275.
- Calendrino R *et al.* 2007. Measurement and control of the air contamination generated in a medical cyclotron facility for PET radiopharmaceuticals, *Health Phys.* 92(5 Suppl): S70–S77.
- FANC-AFCN. 2009. Évaluation des rejets radioactifs gazeux des installations de production de radio-traceurs au moyen d'un cyclotron, Note n° 10-004-F.
- Garnir HP. 2009. *Étude de l'activité parasite produite par le cyclotron IPNAS lors d'irradiations dans l'air*. Université de Liège : IPNAS.
- Guillaume M *et al.* 1990. Recommendations for Fluorine-18 Production, *Appl. Radiat. Isot.* 42(8): 749–762.
- IAEA. 2012. *Cyclotron produces radionuclides: Guidance on facility design and production of [¹⁸F] Fluorodeoxyglucose (FDG)*. Austria: IAEA radioisotopes and radiopharmaceuticals series n°3.
- Jacobson O *et al.* 2014. Fluorine-18 Radiochemistry, Labeling Strategies and Synthetic Routes, *Bioconj. Chem.* 26(1): 1–18.
- Kleck JH *et al.* 1991. Assessment of ¹⁸F gaseous releases during the production of 18F-fluorodeoxyglucose, *Health Phys.* 60(5): 657–660.

- Klett A. 2009. Air monitoring at PET Centers – Berthold technologies. Dans: *21st Annual Air Monitoring Users Group (AMUG)*, 6th May 2009, Meeting Palace Station Hotel, Las Vegas, Nevada, USA.
- Leach V. 2013. The efficiency for gas capture systems for PET cyclotrons and hot cells. Dans: *2013 ARPS Conference*.
- Le Bars D. 1998. Production du FDG, *Revue de l'ACOMEN* 4(1).
- Mochizuki S *et al.* 2013. Analysis of induced radionuclides in replacement parts and liquid wastes in a medical cyclotron solely used for production of ^{18}F for [^{18}F] FDG, *Appl. Radiat. Isot.* 74: 137–143.
- Schweiger L. 2011. An effective technique for storage of short lived radioactive gaseous waste, *Appl. Radiat. Isot.* 69(9): 1185–1188.
- Sharma RB *et al.* 1994. Efficiency of an in-line charcoal filter in automated chemistry process control unit during the synthesis of ^{18}F -fluorodeoxyglucose (FDG), *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 183(2): 329–337.
- Varmenot N. 2010. Cyclotron Arronax, radioprotection d'un cyclotron de haute énergie – haute intensité. Dans : *27^e journées des LARDs*.

Citation de l'article : Cordelle A, Van Ryckeghem S, Fallot A. 2017. État des lieux en France des rejets radioactifs gazeux émis par les installations détenant un cyclotron. *Radioprotection* 52(4): 291–296