



# *Activation de l'air et du béton dans les installations de cyclotron pour la production d'isotopes médicaux*

## ACRP 2016, Toronto



**Adam Dodd**

Agent principal de projet

Division des installations de catégorie II et des accélérateurs

**(613) 993-7930 ou [adam.dodd@canada.ca](mailto:adam.dodd@canada.ca)**

**Canada**

# Aperçu



- Justification
- Méthodes
- Activation de l'air
- Activation du béton
- Conclusions

# Justification



- Neutrons produits dans la cible du cyclotron par la réaction  $(p, Xn)$ 
  - ils peuvent activer les matériaux dans la voûte
  - l'activation de l'air peut présenter un danger radiologique pour les travailleurs
  - l'activation du béton peut causer un problème d'élimination des déchets
- Qu'est-ce qui justifie le renouveau d'intérêt de la CCSN?
  - les cyclotrons sont devenus beaucoup plus puissants
  - auparavant :  $\sim 60 \mu\text{A}$  et fonctionnement pendant 2 heures pour la production de FDG à partir de  $^{18}\text{F}$
  - puissance maintenant de  $500 \mu\text{A}$  et fonctionnement pendant 6 heures pour la production de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$
  - activation 25 fois supérieure!

# Méthodes (1/2)



## Simulations de Monte-Carlo

- MCNP5 (statistiques de 1 %)
- faisceaux de protons de 18 et 24 MeV
- géométrie de voûte simplifiée
- spectres de source de neutrons de  $^{18}\text{F}$  et de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  – présumés isotropes
- exploration de la sensibilité des résultats pour différents facteurs :
  - modifications de la conception de la voûte
  - énergie de la source
  - emplacement de la source
  - blindage de polyéthylène (avec ou sans bore) autour des cibles



# Méthodes (2/2)

## Collaboration avec les étudiants en régime coopératif de l'UOIT

- Rob Shackelton (activation de l'air)
- Devon Carr (activation du béton)
- Audrie Ismail (activation du béton)

# Activation de l'air

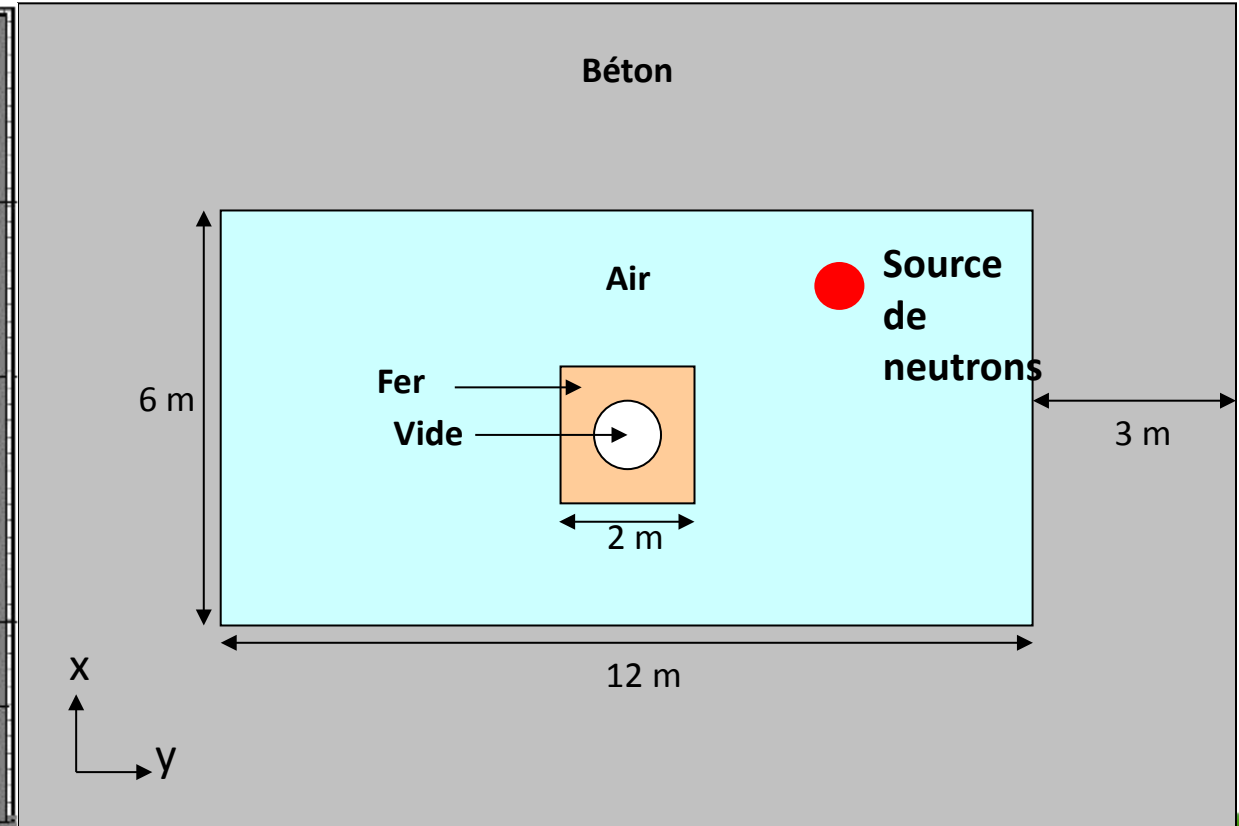
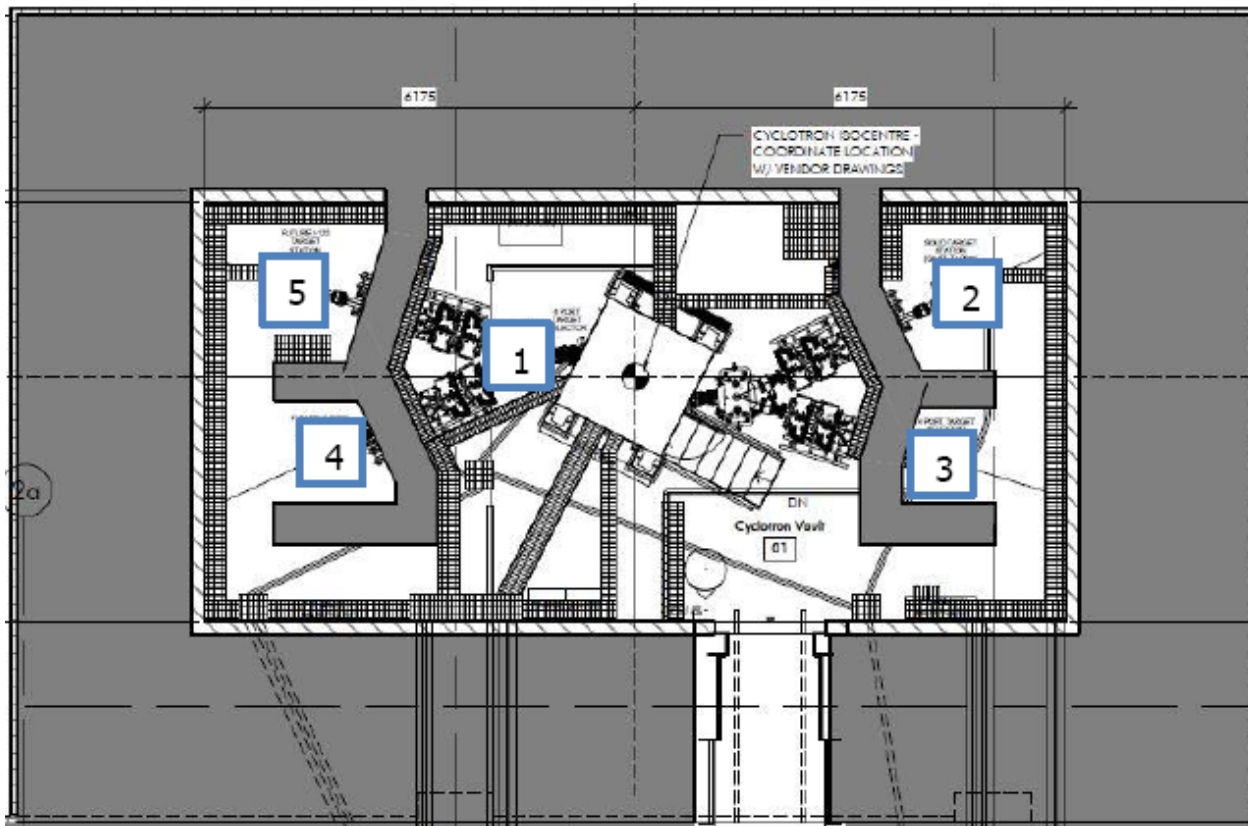


- **L'azote constitue 78 % de l'air**
  - $^{14}\text{N}(n,p) \rightarrow ^{14}\text{C}$  (78 % de l'air)
  - $^{14}\text{C}$  : demi-vie de 5 730 années, rayons  $\beta$  mous – peu de conséquences radiologiques
- **L'oxygène constitue 21 % de l'air**
  - $^{16}\text{O}(n,p) \rightarrow ^{16}\text{N}$  (21% de l'air, seuil de 10 MeV)
  - $^{16}\text{N}$  : demi-vie de 7 s, rayons  $\gamma$  de 6 MeV – peu de conséquences radiologiques
- **L'argon constitue ~ 1 % de l'air**
  - $^{40}\text{Ar}(n,\gamma) \rightarrow ^{41}\text{Ar}$  (0,93 % de l'air)
  - $^{41}\text{Ar}$  : demi-vie de 1,8 h, rayons  $\beta$  durs, rayons  $\gamma$  de 1,3 MeV

**Le principal danger est dû à l'activité de  $^{41}\text{Ar}$ .**

# Géométrie et matériaux

On est passé d'un système complexe à un système extrêmement simple.  
On révèle ainsi les caractéristiques essentielles et on sauve du temps de calcul.



# Spectre de la source de neutrons (1/2)



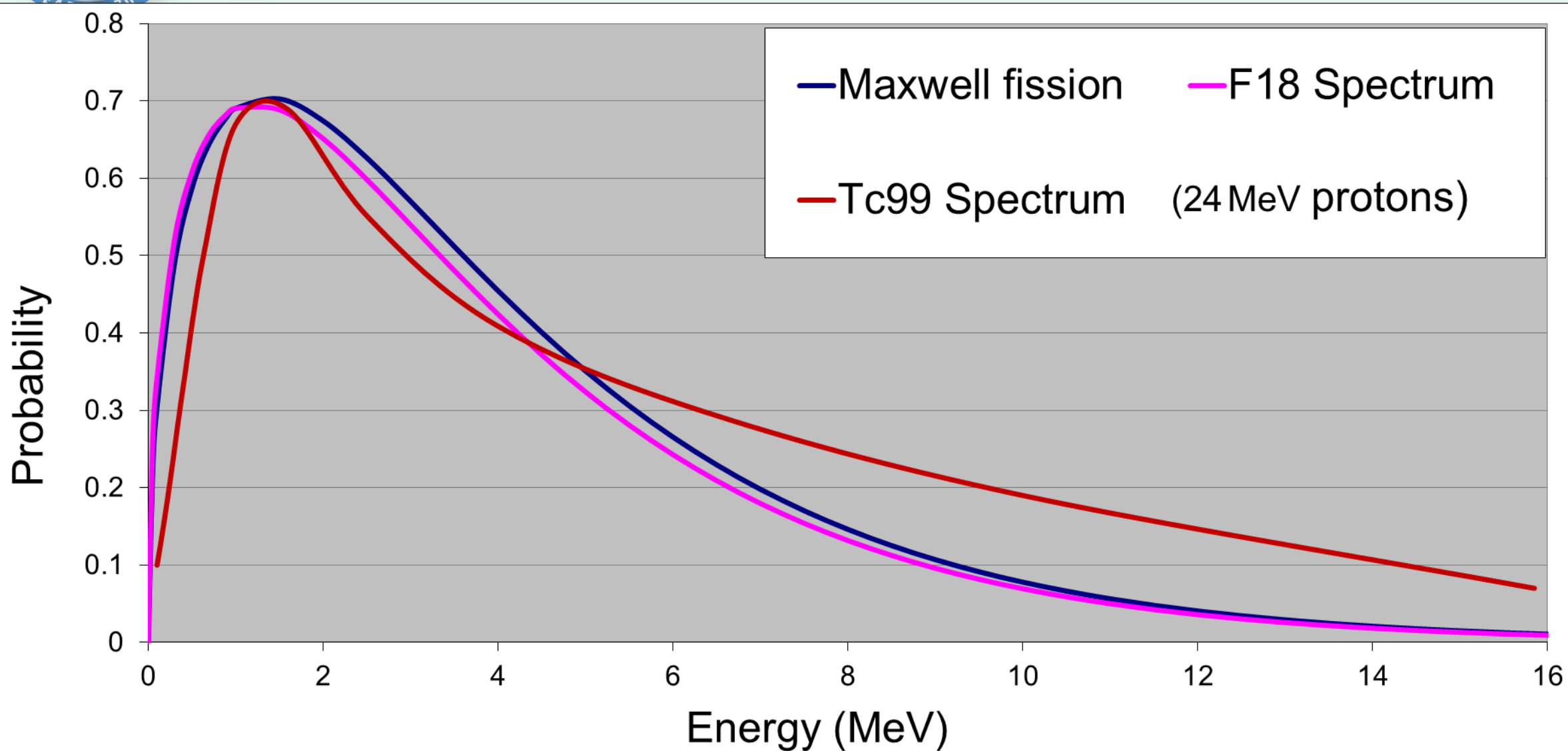
- Une source ponctuelle de neutrons émule la cible pendant l'irradiation (rayonnement isotrope)
- Spectre pour une cible épaisse de  $^{18}\text{F}$ , d'après Mendez et coll. [1]

$$N(E) = 0.27E^{0.45}e^{-\frac{E}{2.7}}$$

- approximation à l'aide du spectre de fission de Maxwell
- 150 tranches d'énergie logarithmiquement espacées
- Spectre du  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  obtenu à l'aide de données de spectrométrie neutronique imbriquées [2]
  - Représentation sous forme d'histogramme
- Tous les spectres sont automatiquement normalisés par la simulation MCNP



# Spectre de la source de neutrons (2/2)

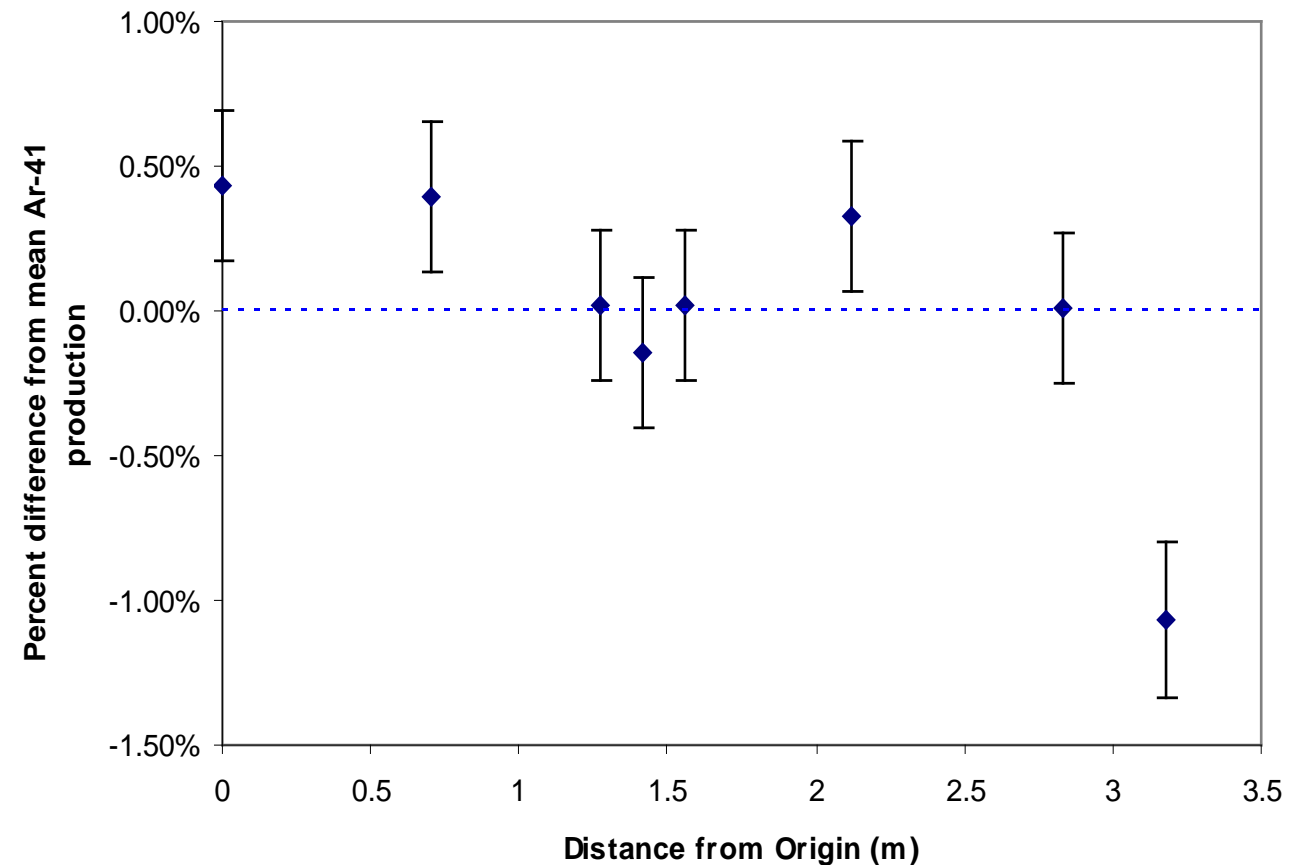


# Positionnement de la source de neutrons



- Voûte de 3 m x 5 m x 5 m
- Huit positions de la source
- On commence à l'origine, et on se déplace en diagonale vers un coin
- En tenant compte des erreurs statistiques, l'effet de l'emplacement de la source est négligeable

Effect of Source Placement on Ar-41 Production



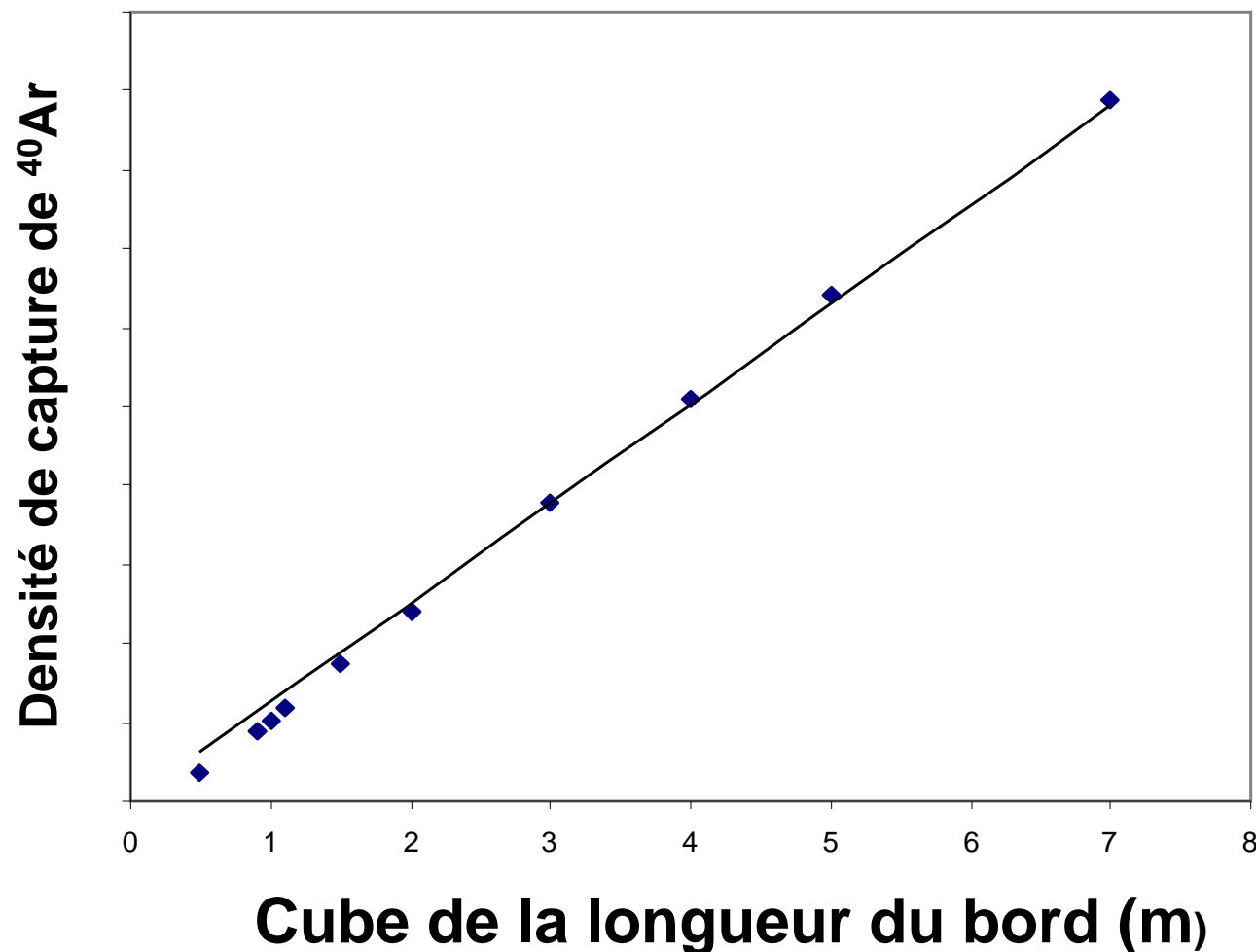
# Dimensions de la voûte



La linéarité est due à l'importance du libre parcours moyen des neutrons dans l'air :  
~ 62 m

On s'écarte de la linéarité dans le cas des formes irrégulières et des voûtes de très petites dimensions

## Capture de $^{40}\text{Ar}$ par rapport au cube de la longueur du bord de la voûte



# Cyclotron et source d'énergie



- Cyclotron en fer ajouté au centre de la pièce
  - Légère **diminution** de la production
  - La densité du cyclotron n'a pas d'effet
- Essais de l'énergie de la source : (voûte de 3 m x 6 m x 12 m avec cyclotron)

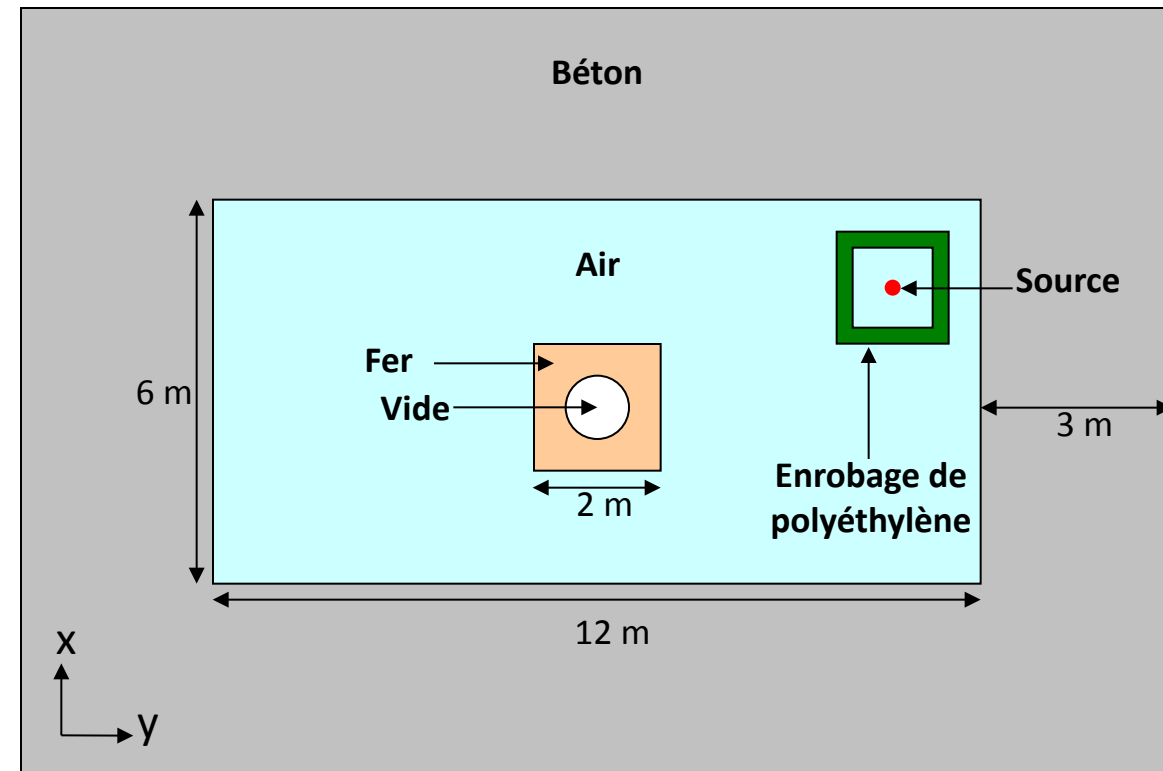
Énergie des neutrons	Production de $^{41}\text{Ar}$ /neutron incident/cm <sup>3</sup>
Spectre de $^{18}\text{F}$	3,0 E-5
Spectre de $^{99}\text{Tc}$	3,6 E-5
Isotope, 1 keV	5,2 E-5
Isotope, 0,025 eV	12,0 E-5



# Enrobage de la cible



- Blindage de la cible avec du polyéthylène
  - Épaisseurs de 5, 10, 50 cm
  - Pas de bore
- Épaisseur critique
  - Un blindage mince thermalise les neutrons
  - > 10 cm nécessaire pour la capture
- Exigences de blindage contre les rayons  $\gamma$

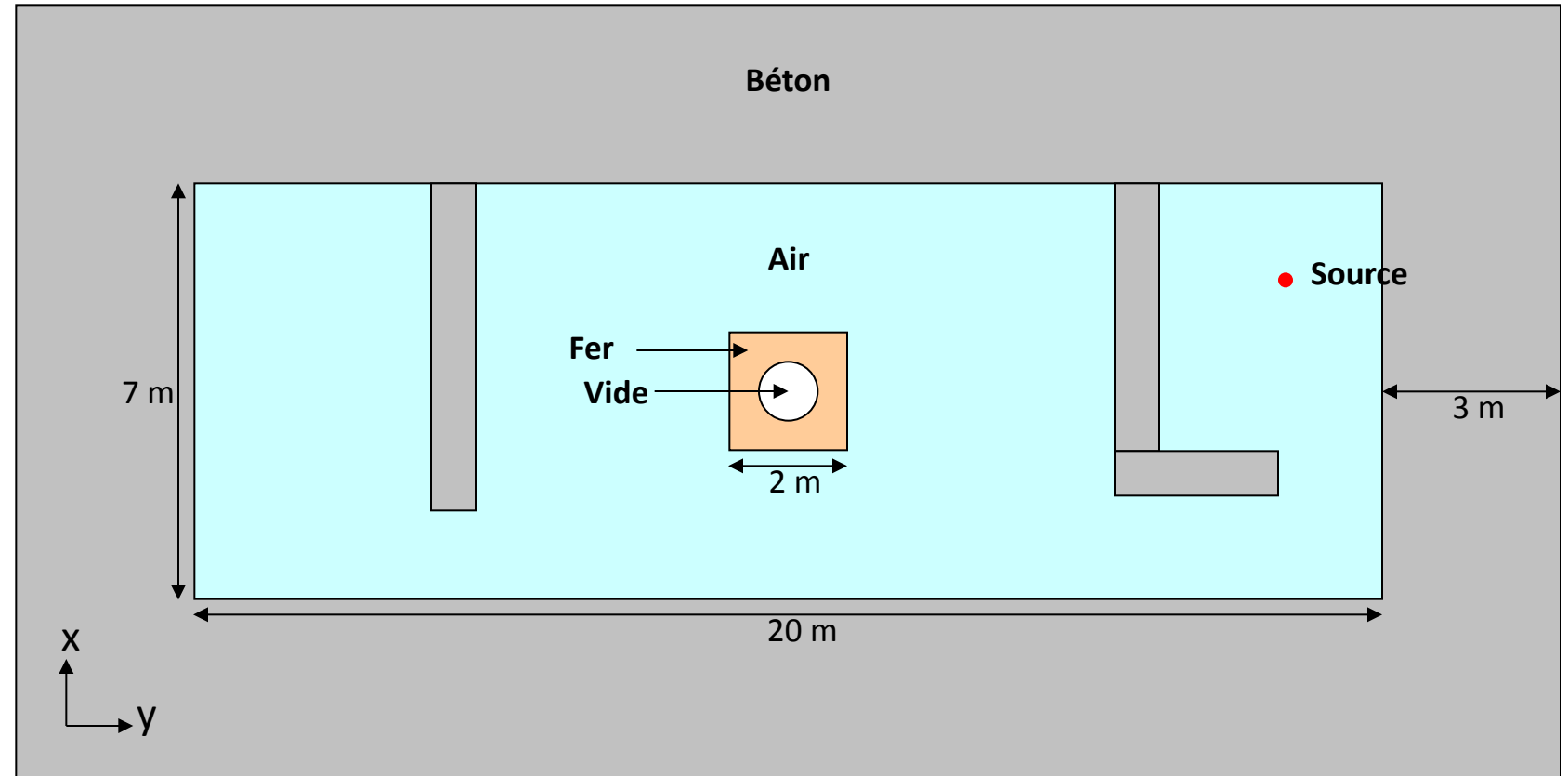


# Cloisons



- La mise en place de cloisons comme ci-dessous a entraîné une diminution de 15 % de la production de  $^{41}\text{Ar}$ .

- La présence d'objets dans la voûte réduit l'activation de l'air.
- Cela justifie le recours à une géométrie simplifiée.



# Activité de $^{41}\text{Ar}$



- Les résultats sont exprimés en captures/neutron – **Combien avons-nous de neutrons par  $\mu\text{A}$  de faisceau?**
  - Le rapport technique TRS-468<sup>x</sup> de l'AIEA donne l'activité de saturation du  $^{18}\text{F}$  à différentes énergies de faisceau; à la saturation
- Taux de production de neutrons = désintégrations de  $^{18}\text{F}/\text{s}$  (Bq)
  - valeur extrapolée à 24 MeV  $\rightarrow$  1,6 E10 n/s/ $\mu\text{A}$
- Pour le  $^{99}\text{Mo}$  (NNS @19 MeV)  $\rightarrow$  3,2 E10 n/s/ $\mu\text{A}$
- **À la saturation**
- $^{18}\text{F}$  à 150  $\mu\text{A}$  - (voûte de 3 x 5 x 5 m)  $\sim$  2 mCi
- $^{99}\text{Tc}$  à 750  $\mu\text{A}$  – (voûte de 3 x 6 x 12 m)  $\sim$  12 mCi

# Dosimétrie – Débit de dose



<b>Tous les débits de dose en <math>\mu\text{Sv/h}</math></b>	<b><math>^{18}\text{F}</math> @ 150 <math>\mu\text{A}</math> 3 m x 5 m x 5 m</b>	<b><math>^{99}\text{Tc}</math> @ 750 <math>\mu\text{A}</math> 3 m x 6 m x 12 m</b>
<b>Gamma externe<sup>3</sup></b>	5,1	17,3
<b>Inhalation<sup>4</sup></b>	0,1	0,3
<b>Peau<sup>5</sup></b>	0,9	2,2

- Hypothèse : production jusqu'à saturation
- Dose à la peau – limite supérieure – hypothèse : pas de vêtements



# Activation de l'air – Résumé



1. La présence d'objets dans la voûte réduit l'activation de l'air.
  - Justifie le recours à une géométrie simplifiée.
2. L'activation de l'air n'est pas un problème pour le  $^{18}\text{F}$ .
  - Les résultats sont pour la saturation de  $^{41}\text{Ar}$  (demi-vie de 1,8 h) .
  - Les temps de fonctionnement sont d'une durée  $\sim 3$  heures et habituellement plus courts pour le  $^{18}\text{F}$ .
3. Il peut y avoir un problème pour le  $^{99}\text{Tc}$ .
  - Les temps de fonctionnement sont de  $\sim 6$  heures, et l'intensité du faisceau est  $\sim 3$  fois plus élevée.
4. La ventilation réduit grandement le problème.
  - Moins de temps pour l'accumulation de  $^{41}\text{Ar}$  dans la voûte et temps d'exposition réduit – un changement d'air par heure réduit la dose par un facteur de  $\sim 10$ .

# Activation du béton



**Cette activation produit des déchets radioactifs, ce qui influe sur les coûts de déclassement.**

- 1. Quelle est la profondeur de l'activation?**
- 2. Quel est l'effet des couches de polyéthylène (avec ou sans bore)?**
- 3. L'activation se produit-elle sur toute les surfaces intérieures de la voûte? Ou bien est-elle localisée?**



# Examen de la littérature (1/2)

## Déclassement d'un cyclotron [6]

Cyclotron Scanditronix de 17 MeV, âgé de 20 ans ( $\sim 40 \mu\text{A}$ )

- 40 tonnes de déchets radioactifs de faible activité, y compris les murs de la voûte en béton
- Activités avec  $\tau_{1/2} > 1$  an

Isotope	Activité mesurée (Bq/g)	NLI (Bq/g)
$^{60}\text{Co}$	<b>0,068</b>	0,1
$^{134}\text{Cs}$	0,005	0,1
$^{152}\text{Eu}$	<b>0,083</b>	0,1
$^{154}\text{Eu}$	0,010	0,1
$^{54}\text{Mn}$ *	0,016	0,1
<b>Total</b>	<b>0,18</b>	<b>0,1</b>

NLI : niveau de libération inconditionnel auquel les matériaux **peuvent être rejetés comme matières non radioactives.**

\* Produit par des neutrons rapides par la réaction (n,p) plutôt que par la réaction (n, $\gamma$ ).

# Examen de la littérature (2/2)



## Étude en réacteur [7]

Échantillon de béton ordinaire prélevé dans le **réacteur** TRIGA en **Slovénie**

Exposition de 30 minutes @ un flux de neutrons de  $6,8 \cdot 10^{12}$  n/s/cm<sup>2</sup>

**Principales activités observées :  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{60}\text{Co}$  à 6 Bq/g**

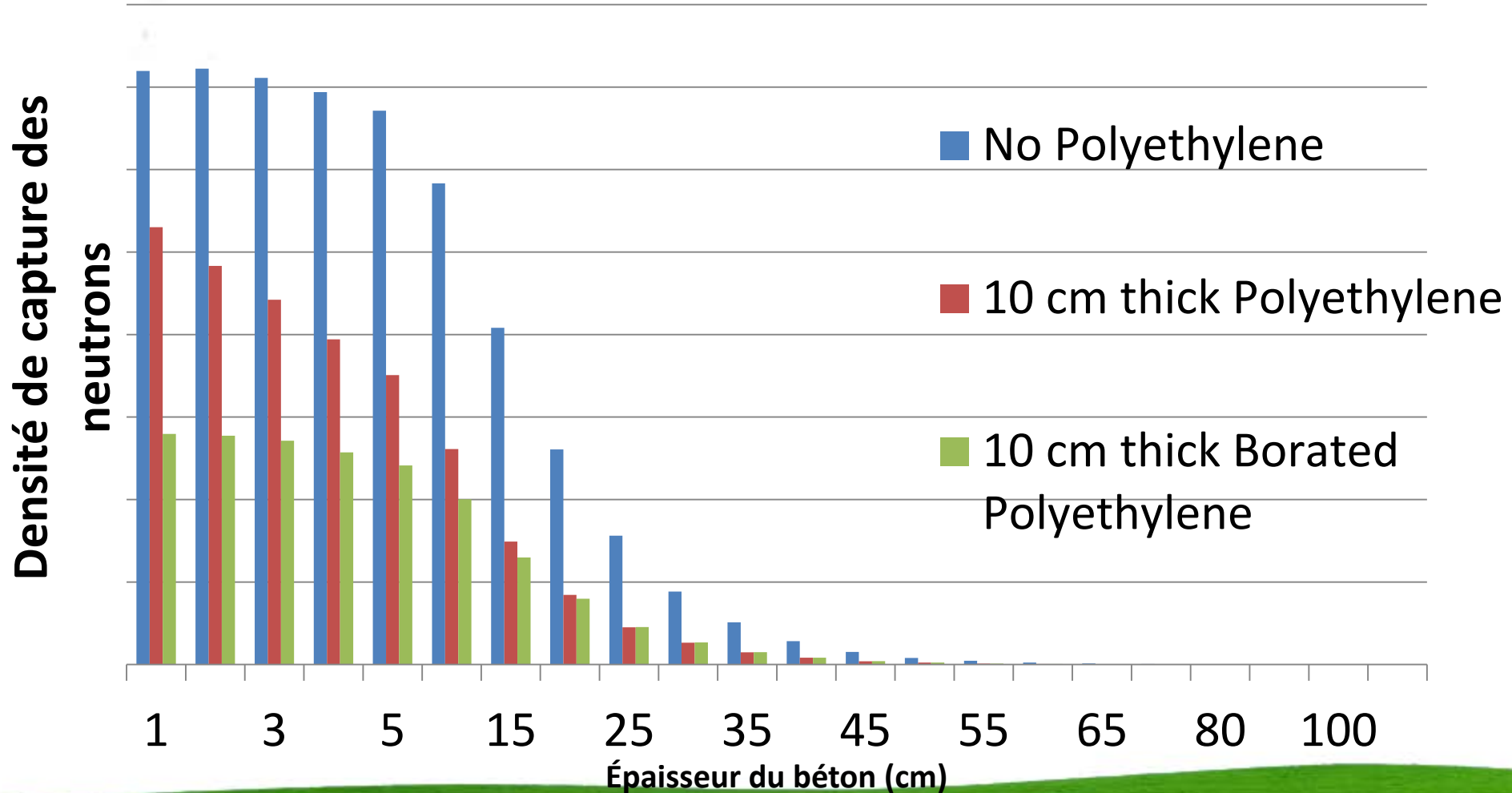
**Conclusion – l'activation du béton pourrait être un problème avec les nouveaux cyclotrons**





# Profondeur d'absorption

Densité de capture des neutrons dans le béton (production de  $^{18}\text{F}$ )



# Blindage de la cible avec du polyéthylène

Épaisseur de la couche de polyéthylène (cm)	Pourcentage de neutrons capturés dans la couche de polyéthylène	Pourcentage de neutrons capturés dans la couche de polyéthylène avec du bore
5	17,1	32,0
10	52,0	65,8
15	72,5	82,9
20	82,6	91,1

- Les résultats indiquent quelle devrait être l'épaisseur de la couche sacrificielle (si on en utilise une).
- Le polyéthylène régulier est presque aussi bon que le polyéthylène avec bore.
- L'une ou l'autre option devrait être moins coûteuse que l'utilisation de couches sacrificielles dans la voûte.
- Et on peut l'utiliser après la construction de la voûte.

# Répartition spatiale dans la voûte



**Nous savons que l'activation atteint des profondeurs ~ 20 cm**

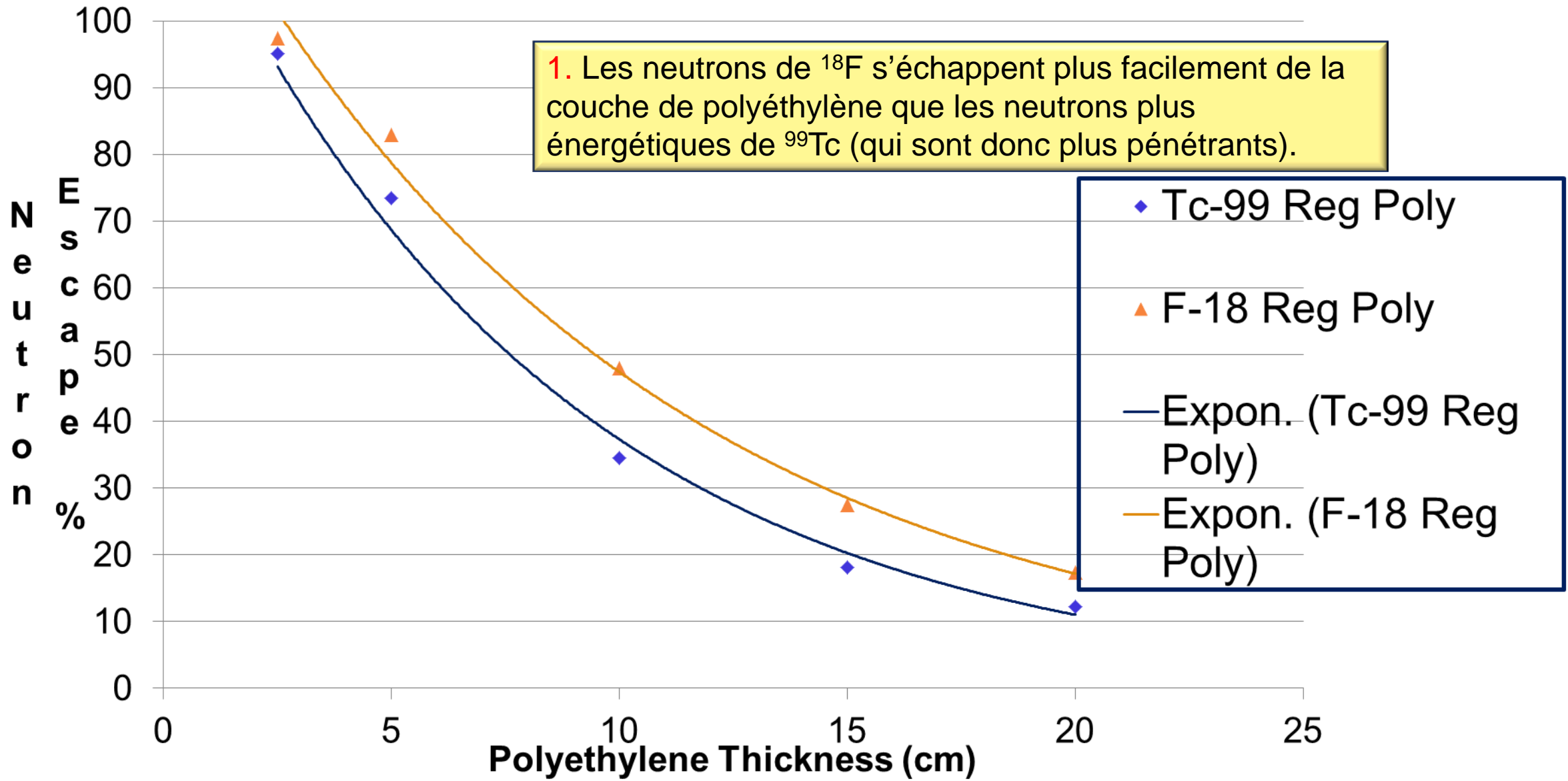
Mais cette profondeur était une moyenne pour l'ensemble des surfaces intérieures de la voûte.

**Se produit-elle sur toutes les surfaces intérieures de la voûte? Ou bien est-elle localisée?**

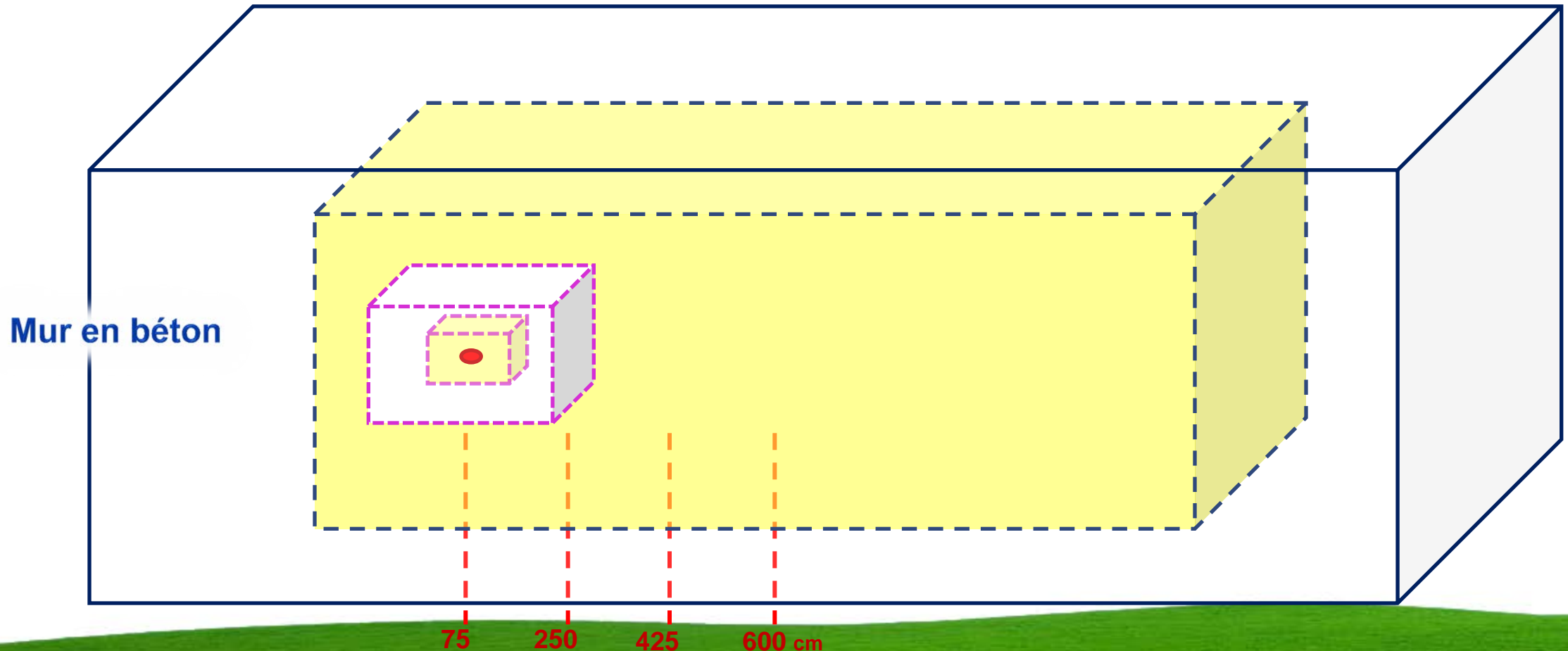
## Scénario étudié

1.  $^{99}\text{Tc}$  par rapport à  $^{18}\text{F}$
2. Déplacement de la source à l'intérieur de la voûte
3. Répartition latérale de la densité de capture des neutrons à l'intérieur d'un côté du mur

# 1. Pourcentage de fuite de neutrons pour du polyéthylène régulier enrobant la cible – Source de $^{99}\text{Tc}$ par rapport à $^{18}\text{F}$

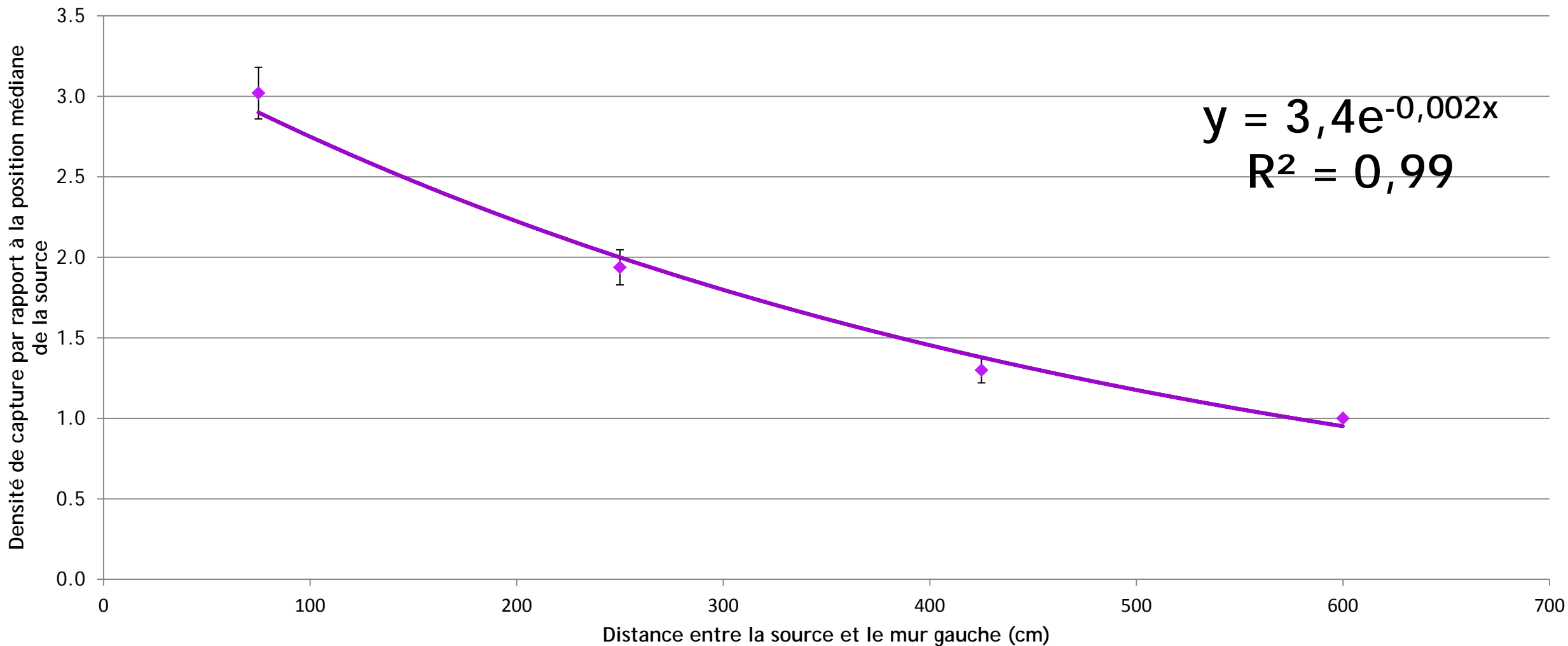


## 2. Déplacement de la position de la source le long de l'axe Y avec une couche de polyéthylène de 20 cm d'épaisseur

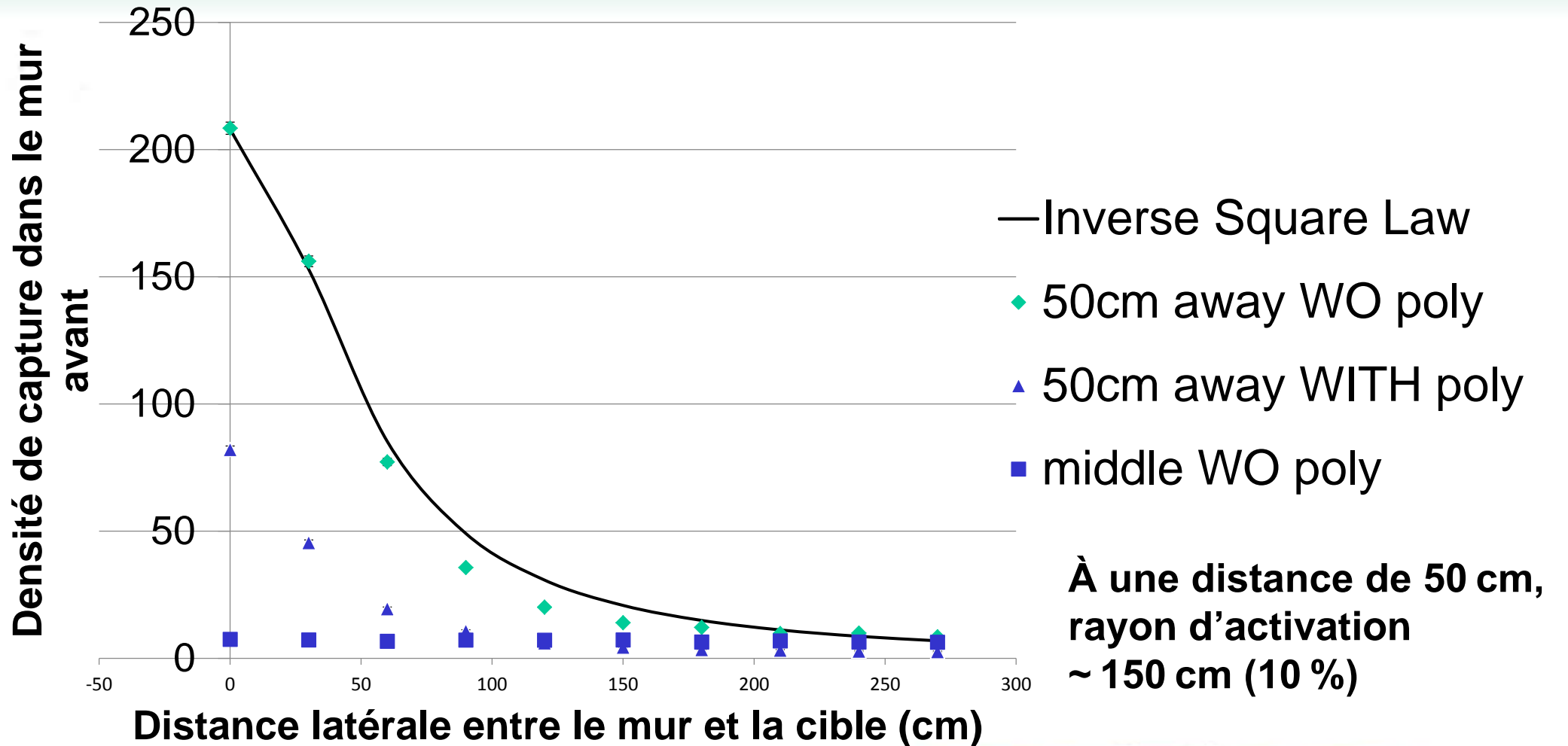




## 2. Densité de capture relative du mur gauche par rapport à la position de la source de $^{99}\text{Tc}$



### 3. Répartition latérale de la densité de capture de neutrons dans le mur proche



# Impact d'ordre réglementaire



1) Comparaison du flux de neutrons d'un cyclotron avec le flux du réacteur TRIGA

- Après 1 an d'exploitation complète → 0,35 Bq/g de  $^{152}\text{Eu}$  et 0,33 Bq/g de  $^{60}\text{Co}$  (**quantité mesurable**)
- Après 25 ans d'exploitation → 7 Bq/g de  $^{152}\text{Eu}$  et 3 Bq/g de  $^{60}\text{Co}$

2) 100 x la limite réglementaire **pour l'élimination sous forme de déchets non radioactifs**

3) Si aucune mesure n'est prise, cela aura un effet sur les coûts de déclassement et probablement sur la garantie financière.

# Conclusions



- **Activation de l'air** – N'est pas un problème important et peut facilement être réduit par :
  - la ventilation
  - l'accès restreint pendant quelques heures (assez pour permettre le refroidissement du cyclotron)
  - la détection de  $^{41}\text{Ar}$  dans la surveillance de zone dans la voûte.
- **Activation du béton**
  - pourrait être un problème pour le déclassement;
  - Concerne seulement le béton près de la cible – y compris le plancher.

**Dans les deux cas, il est suggéré d'enrober la cible de polyéthylène avec bore.**

- **Expérience – activer un échantillon de béton de la voûte et analyser par spectroscopie  $\gamma$**
- Le spectre des neutrons pour un réacteur n'est pas tout à fait le même que le spectre des neutrons pour un cyclotron.
- Les impuretés peuvent différer d'un béton à un autre.

# Questions?





# Références



- [1] Mendez R. et. al. “Study of the neutron field around a PET cyclotron”. Présentation à la conférence IRPA11, mai 2004.
- [2] Debeau J. et. al. “The Measurement of Neutron Energy Spectra in the High Neutron Flux Environments of Medical Accelerators Using Nested Neutron Spectrometer” (2013 ACRP conference poster).
- [3] *Ar-41 source modeled as uniform equivalent sphere. Specific Gamma constant* from Delacroix D. et al., Rad. Prot. Dosimetry v. 98, no. 1 pp. 9-18 (2002).
- [4] Thériault B. “Inhalation dose coefficient for Ar-41”, comm. privée (2012).
- [5]  *$\beta$  skin dose coefficient linearly extrapolated from data of - Fell TP*, Rad. Prot. Dosimetry V. 36 No. 1, pp. 31-35 (1991).
- [6] Sunderland J. et al. “Considerations, measurements and logistics associated with low energy cyclotron decommissioning (2011)”, AIP Conf. Proc. 1509, 16 (2012): <http://dx.doi.org/10.1063/1.4773931>.
- [7] Zagar T., Ravnik M., “Measurement of Neutron Activation In Concrete Samples”, Proc. Int. Conf. “Nuclear Energy In Central Europe 2000”.

# Résultats initiaux

- Voûte vide de 3 m x 5 m x 5 m, avec source ponctuelle

