

Radioactive aerosol emission study related to technetium generator operation in a nuclear medicine department

P. Bombardier, F. Gensdarmes, D. Daugeron, A. Roche, A. Veyre, F.

Giammarile, C. Houzard, M. Fraysse, J.-P. Quisefit

▶ To cite this version:

P. Bombardier, F. Gensdarmes, D. Daugeron, A. Roche, A. Veyre, et al.. Radioactive aerosol emission study related to technetium generator operation in a nuclear medicine department. Radioprotection, 2012, 47 (4), pp.521-532. 10.1051/radiopro/2012019 . hal-02920234

HAL Id: hal-02920234 https://hal.science/hal-02920234

Submitted on 28 Jun 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés. Radioprotection 2012 Vol. 47, n° 4, pages 521 à 532 DOI: 10.1051/radiopro/2012019

– Article ———

Qualification des émissions d'aérosols radioactifs liées à l'utilisation d'un générateur de technétium en service de médecine nucléaire

P. BOMBARDIER^{1,2}*, F. GENSDARMES³, D. DAUGERON⁴, A. ROCHE¹, A. VEYRE⁵, F. GIAMMARILE⁶, C. HOUZARD⁶, M. FRAYSSE⁶, J.-P. QUISEFIT²

(Manuscrit reçu le 20 décembre 2011, accepté le 14 mars 2012)

RÉSUMÉ

É L'objectif de ce travail est de caractériser l'émission de particules radioactives de ^{99m}Tc (technétium-99 métastable émetteur gamma de demi-vie 6 h) servant au marquage pulmonaire dans l'environnement d'un service de médecine nucléaire. Nous avons étudié les fuites du système générateur de particules radioactives lors d'un examen de scintigraphie pulmonaire. Cette éventuelle source de contamination ambiante a été peu étudiée et une méthodologie de surveillance spécifiquement adaptée reste à développer. Pour mesurer les fuites des générateurs d'aérosols radioactifs étudiés, nous avons conçu une enceinte d'essai transportable permettant de capter les particules et de les échantillonner avec une précision connue, un niveau de bruit de fond très faible et une capacité d'enregistrer les émissions transitoires courtes. Nous présentons les opérations de caractérisation de ce système et les résultats obtenus avec des patients. Ces résultats montrent que l'activité émise en ambiance par les fuites du générateur es supérieure à celle déposée dans les poumons du patient par inhalation, soit respectivement 5,7 % et 3,8 % de l'activité initialement introduite dans le générateur.

ABSTRACT Radioactive aerosol emission study related to technetium generator operation in a nuclear medicine department.

The objective of this work is to characterize the emission of radioactive particles of ^{99m}Tc (technetium-99, a metastable gamma emitter of 6 h half-life) for lung marking in the environment of a nuclear medicine department. We studied the leakage of radioactive particles from the generating system during a lung scan test. This possible source of air contamination has been little studied and a specifically adapted survey methodology remains to be developed. To measure the leakage of radioactive particles from the generator, we designed a transportable test enclosure permitting one to collect and sample particles with a known accuracy, a low background level and the capability of recording short time events. Here, we present the

RADIOPROTECTION - VOL. 47 - © EDP Sciences, 2012

Article publié par EDP Sciences

¹ Faure QEI, 27 boulevard des Alpes, 38240 Meylan, France.

² Laboratoire InterUniversitaire des Systèmes Atmosphériques, 61 avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil, France.

³ IRSN, Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette, France.

⁴ Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace, 3A Av. de la recherche scientifique, 45071 Orléans, France.

⁵ Centre Jean Perrin, 58 rue Montalembert, 63011 Clermont-Ferrand, France.

⁶ Centre Hospitalier Universitaire de Lyon Sud, Chemin du Grand Revoyet, 69495 Pierre-Bénite, France.

^{*} p.bombardier@faure-qei.com

characterization operations for this system and results we obtained with patients. The results show that radioactivity released in the air by the generator leakage is superior to that deposited in the patients' lungs by inhalation, that is, respectively, 5.7% and 3.8% of the total radioactivity initially introduced into the generator.

Keywords: aerosol / nuclear medicine / contamination, internal / 99mTc technetium

1. Introduction

La scintigraphie pulmonaire de ventilation pratiquée en médecine nucléaire se réalise à l'aide de gaz (krypton-81 métastable) ou d'aérosol (particules marquées au technétium-99 métastable) inhalé par le patient. Le ^{99m}Tc est utilisé de manière routinière par plusieurs services de médecine nucléaire (notamment sous forme d'aérosol de Technegas[®] produit par les générateurs fabriqués par la société *Cyclomedica*) en raison de la faible disponibilité du générateur de ^{81m}Kr et de son coût élevé.

Or, des études précédentes (Daugeron *et al.*, 2004) ont montré la présence en ambiance de particules provenant de générateurs de Technegas[®]. De plus, les praticiens en médecine nucléaire connaissent la difficulté de certains patients à utiliser l'embouchure et suspectent des fuites variables à ce niveau.

Afin de comprendre l'impact possible sur l'exposition du personnel soignant, nous avons choisi de mener une étude de ces émissions en développant des méthodes de mesure adaptées à la durée courte des émissions et aux caractéristiques de l'aérosol (particules ultrafines de graphite provenant du creuset dans lequel est disposée la solution de technétium). Pour cela nous avons développé une enceinte d'essai pour détecter les émissions des générateurs.

On notera que des études récentes de l'IRSN concernant l'apport du réaménagement partiel d'un service de médecine nucléaire en termes de radioprotection n'ont pas identifié de progrès sur la maîtrise de la contamination atmosphérique au ^{99m}Tc (IRSN, 2011 ; Grandcoing *et al.*, 2011).

2. Description et qualification de l'enceinte d'essai

Pour analyser les émissions provenant d'un générateur d'aérosol marqué au technétium, nous avons conçu l'enceinte d'essai représentée sur la figure 1. L'objectif est de créer un environnement avec un bruit de fond particulaire très bas permettant de détecter de faibles et courtes émissions de particules.



Figure 1 – Vue d'ensemble de l'enceinte d'essai. Overview of the test enclosure.

Le système se compose d'un système de soufflage d'air propre incluant un ventilateur muni d'un variateur et un filtre absolu HEPA (*High Efficiency Particulate Air*) de type H14 assemblés sur le sommet de l'enceinte. L'air est ainsi soufflé vers le bas dans le volume d'essai, traverse la grille qui supporte le système à étudier puis passe par un mélangeur placé devant la sonde d'échantillonnage (connecté à un analyseur de particules ou de gaz traceur).

La zone d'essai (volume de $0,58 \text{ m}^3$) présente un taux de renouvellement d'air de 1150 vol/h pour une vitesse de soufflage de 30 cm/s (réglable entre 0 et 50 cm/s). La surpression est de 10 Pa pour ce réglage de vitesse.

Les systèmes à tester sont placés sur le plateau perforé (charge jusqu'à 150 kg) puis la porte est fermée de manière étanche pour obliger les émissions à passer par le circuit de mesure.

Nous pouvons définir d'après les caractéristiques de cette enceinte le taux de prélèvement qui est le rapport entre le débit analysé et le débit réel dans l'enceinte. Celui-ci est de 0,28 % pour les réglages choisis : cette valeur permet le calcul de l'émission totale.

Les résultats des essais de caractérisation de l'enceinte d'essai sont les suivants :

vitesse de soufflage mesurée avec un anémomètre à fil chaud : 29,2 ± 3,5 cm/s ;

RADIOPROTECTION – VOL. 47 – N° 4 (2012)

- qualité de l'écoulement (visualisé par fumigène) : écoulement homogène et unidirectionnel hormis au niveau de la couche limite sur les parois latérales. En présence d'un équipement nous avons observé des turbulences au-dessus des surfaces horizontales mais sans compromettre l'évacuation rapide des fumées ;
- intégrité du filtre HEPA (vérification par compteur optique de particules > 0,1 μm) : pas de fuite locale supérieure ou égale à 0,025 % pour le filtre HEPA ;
- niveau de propreté de l'air dans la zone d'essai : concentration particulaire pour les tailles > 0,1 µm inférieure à 1000 particules par m³ (définition de la classe ISO 3). Un résultat identique a été obtenu au niveau de la sonde d'échantillonnage placée sous le mélangeur ;
- cinétique de décontamination : décroissance de la concentration d'un facteur 100 en 38 secondes (capacité de détecter des évènements transitoires courts).

La principale opération de caractérisation concerne la capacité à quantifier précisément les émissions quelles que soient leurs positions à l'intérieur de la zone d'essai. De plus, la présence d'un équipement à l'intérieur de la zone d'essai (ce qui a une incidence importante sur l'écoulement de l'air) ne doit pas perturber la capacité de détection des émissions.

Pour évaluer cette capacité de détection, nous avons réalisé plusieurs mesures de concentration dans la sonde de prélèvement pour différents points d'injection d'un gaz traceur (SF₆) dans l'enceinte, les valeurs obtenues sont comparées avec une valeur de référence correspondant à l'injection du SF₆ en amont du ventilateur (homogénéisation optimale). Les écarts de concentrations par rapport à la valeur de référence en fonction de la position d'injection (le schéma de la Fig. 2 montre les positions d'injection choisies en rouge) sont appelés Δ_i . Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.

Les résultats obtenus avec le SF₆ montrent que la valeur de la concentration mesurée par l'intermédiaire de la sonde de prélèvement n'est pas dépendante de la localisation du point d'injection du gaz traceur dans le volume d'essai $(\Delta_{i \max} = 10, 4 \%)$.

Le même essai a été mené avec des particules calibrées de diamètre 1 μ m avec pour résultat un écart $\Delta_{i \max}$ égal à 10,9 %, ce qui est jugé acceptable. Signalons que ces mesures ne représentent pas les pertes dans le système de prélèvement, mais seulement les écarts liés à la dispersion aéraulique en amont du point de prélèvement.

Ces résultats correspondent à l'objectif recherché et ont permis l'utilisation de cette enceinte dans des services de médecine nucléaire.



Figure 2 – Localisation des points d'injection de SF6. (a) Enceinte vide. (b) Équipement placé dans l'enceinte.

Position of SF6 injection points. (a) Empty enclosure (left). (b) Enclosure filled with equipment.



Figure 3 – Écarts entre la concentration dans la sonde et la concentration de référence en fonction des différents points d'injection. (a) Enceinte vide. (b) Équipement placé dans l'enceinte. Difference between SF6 concentration inside the sampling probe and the reference value for the various injection points. (a) Empty enclosure (left). (b) Enclosure filled with equipment.

3. Mesure de la cinétique des fuites du générateur

Les différentes versions du générateur de Technegas[®] ont été testées au sein de trois services de médecine nucléaire et ont montré des résultats très différents.

RADIOPROTECTION – VOL. $47 - N^{\circ} 4$ (2012)



Figure 4 – Séance de ventilation pulmonaire. A pulmonary ventilation session.

Les essais ont été menés en conditions réelles avec des patients. La figure 4 illustre le raccordement entre le générateur et un volontaire qui respire au travers d'un inhalateur qui a une fonction de filtration de l'air exhalé.

Les émissions ont pu être caractérisées en temps réel grâce à plusieurs instruments de mesure couvrant une large gamme de taille et de concentration de particules. Pour cela, on utilise un compteur optique (COP), un compteur de noyaux de condensation (CNC) et un APS (*Aerodynamic Particle Sizer*). La figure 4 représente les fuites d'aérosol mesurées pendant une opération de ventilation pulmonaire. Cette opération comprend plusieurs phases dont l'évaporation de la solution radioactive introduite dans le creuset du générateur, le chauffage du creuset permettant la production de l'aérosol, l'émission de l'aérosol vers l'embout buccal pour l'inhalation par le patient, la purge de la chambre contenant le creuset et l'ouverture du tiroir pour la récupération du creuset. Ces résultats tiennent compte du taux d'échantillonnage de notre système de mesure.

Les résultats de la figure 5 montrent que les phases qui conduisent aux fuites les plus importantes sont la phase d'émission de l'aérosol (production et inhalation) et la phase d'ouverture du tiroir après la purge.



Figure 5 – Mesure effectuée durant l'utilisation d'un générateur de Technegas[®] (Modèle Technegas[®], n° de série 972004). * CNC : Compteur de Noyaux de Condensation. Type Grimm 5.400. ** COP : Compteur Optique de Particules. Type Grimm 1.109. *** APS : «Aerodynamic Particle Sizer ». Type TSI 3321.

Emission measurement during Technegas[®] generator utilization (Technegas model, serial number 972004).

Nous avons, de la même manière, réalisé des essais sur plusieurs générateurs du même fabricant mais de conceptions différentes (deux modèles existants). Les enseignements principaux sont les suivants :

- on constate une variation des émissions d'un facteur 100 (en nombre) d'un modèle de générateur à l'autre pour les particules de taille supérieure à 0,3 µm;
- on dénombre au total une production de plus de 10⁹ particules de taille supérieure à 4,5 nm ;
- l'efficacité de la purge (auto-nettoyage du générateur) est établie à 95 % ou 99,9 % selon les modèles.

4. Mesure de la granulométrie en activité des émissions

Des prélèvements par impacteur basse pression (Dekati DLPI) ont permis de mesurer la répartition granulométrique de l'activité, d'une part, en sortie de générateur *via* le tuyau permettant l'inhalation par le patient, d'autre part, en sortie de l'enceinte d'essai (mesure correspondant aux fuites du générateur).

RADIOPROTECTION – VOL. $47 - N^{\circ} 4$ (2012)



Figure 6 – Distributions granulométriques de l'activité mesurées avec l'impacteur basse pression DLPI (Dekati).

Activity granulometric distribution measured with a DLPI (Dekati) Low Pressure Impactor.

Pour la mesure de la distribution granulométrique de l'activité, le DLPI qui est équipé de feuilles en aluminium graissées sur chaque étage d'impaction, est connecté directement sur le générateur par l'intermédiaire du tuyau servant normalement à l'inhalation par le patient. Un cycle complet de production d'aérosol est réalisé, puis les supports de collecte sont analysés par un spectromètre gamma préalablement étalonné avec un dépôt de forme identique sur lequel est déposée une activité connue.

Pour l'analyse des particules provenant des fuites, l'aérosol est prélevé classiquement en sortie de l'enceinte d'essai et la quantité totale émise est calculée d'après le taux de prélèvement de l'enceinte.

Les résultats des mesures de ces distributions granulométriques sont représentés sur la figure 6. Signalons que ces résultats ne sont pas obtenus de façon simultanée, mais lors de deux séquences consécutives d'utilisation du générateur. Pour l'aérosol destiné à l'inhalation par le patient, le diamètre aérodynamique médian en activité est égal à 0,32 µm et l'écart-type géométrique de la distribution est égal à 2,8. Pour l'aérosol issu des fuites du générateur, le diamètre aérodynamique médian en activité est égal à 0,50 µm et l'écart-type géométrique de la distribution est égal à 1,8.

Afin de déterminer la répartition de l'activité utilisée dans le générateur, nous calculons l'activité déposée dans les poumons en utilisant les courbes de la



Figure 7 – Calcul de l'activité déposée dans les voies respiratoires du patient. Calculation of the activity deposited in the patient's respiratory airway.

publication 66 de la CIPR (ICPR, 1994). Les résultats sont représentés sur la figure 7. La fraction déposée totale correspond à la somme des dépôts régionaux alvéolaires, thoraciques et extra-thoraciques (Witschger et Fabriès, 2005).

5. Détermination de la répartition de l'activité introduite dans le générateur

Les résultats des mesures et le calcul du dépôt à l'aide du modèle de la CIPR permettent de déterminer la répartition de l'activité initialement introduite dans le générateur avec les données suivantes :

- A₁ représente l'activité totale utilisée par le radiopharmacien ;
- A₂ représente l'activité de l'aérosol produit est obtenue par spectrométrie gamma à partir des prélèvements par DLPI ;
- A₃ représente l'activité correspondant aux fuites est obtenue par la même méthode à partir du prélèvement en sortie de l'enceinte (la valeur est multipliée par le taux de prélèvement de l'enceinte déterminé précédemment) ;
- A₄ représente l'activité du filtre de l'inhalateur qui piège les particules exhalées par le patient est mesurée avec le spectromètre gamma ;
- A₅ représente l'activité déposée dans les poumons est calculée à partir de A₂ en appliquant la courbe de dépôt de la publication 66 de la CIPR (sans facteur correctif d'inhalabilité puisque un embout buccal est utilisé) ;





on déduit de ces valeurs l'activité restant dans le générateur A₆ = A₁ - A₃ - A₄ - A₅.

Signalons que cette répartition représentée sur la figure 8 est calculée en négligeant les éventuelles fuites au niveau de l'embout buccal lorsque le patient inhale et exhale.

Ces résultats montrent que :

- l'activité déposée dans les poumons représente 3,8 % de l'activité initialement introduite dans le générateur;
- l'activité émise par les fuites du générateur représente 5,7 % de l'activité initialement introduite dans le générateur.

Ces essais ont permis pour la première fois d'analyser les émissions de ce type de générateur avec une résolution temporelle suffisamment fine pour distinguer les différentes phases de fonctionnement. On observe clairement que les phases d'émission dans l'environnement correspondent principalement à la période de

production/émission de l'aérosol et à l'ouverture du tiroir en façade (purge incomplète). De plus, nous avons pu mesurer la distribution granulométrique de la radioactivité, information nécessaire pour les calculs d'exposition.

Signalons que les résultats présentés ici correspondent à ceux obtenus avec un seul patient et peuvent donc varier d'un essai à l'autre en raison de la variabilité du débit d'inhalation et de la capacité pulmonaire du patient, ainsi que de l'ajustage de l'embouchure respiratoire.

6. Conclusion

L'enceinte d'essai mise au point pour caractériser le terme source de l'émission du Technegas[®] a donné des résultats satisfaisants qui nous renseignent sur les quantités émises et les caractéristiques de cet aérosol. L'enceinte d'essai a été caractérisée de manière approfondie permettant de connaître ses performances et en particulier l'incertitude relative à l'échantillonnage.

Les résultats pratiques obtenus lors d'études de rejets dans l'atmosphère de services de médecine nucléaire montrent que l'activité émise en ambiance par les fuites du générateur est supérieure à celle déposée dans les poumons du patient par inhalation, soit respectivement 5,7 % et 3,8 % de l'activité initialement introduite dans le générateur. Ce résultat est obtenu sur la base de la mesure des fuites du générateur, de la caractérisation de la distribution granulométrique de l'activité dans l'aérosol avec un impacteur basse pression et de l'utilisation du modèle de dépôt des particules dans les voies respiratoires de la publication 66 de la CIPR (ICRP, 1994).

Ceci confirme que les dispositifs de confinement sont essentiels pour ce type d'application, notamment lors de la connexion du système d'inhalation et de l'ouverture du tiroir porte-source du générateur.

Compte tenu de la fugacité de ces émissions et de la période du ^{99m}Tc, une évolution de la contamination ambiante ne peut être mise en évidence que par une mesure spécifique, en temps réel de l'aérosol. Ceci nécessite alors le développement d'un capteur dédié à cette surveillance et adapté au système hospitalier.

Remerciements. Nous adressons nos sincères remerciements aux responsables et au personnel des services de médecine nucléaire du CHU de Lyon-sud, du centre Jean Perrin de Clermont-Ferrand, du service Scintep de l'Institut Daniel Hollard de Grenoble et à la société Cyclopharma pour leur contribution à ces travaux.

RÉFÉRENCES

- Daugeron D., Personne P., Bourdassol-Rossi C., Fraysse M., Gaïd D. (2004) Étude de l'aérocontamination après utilisation du générateur de Technegas[®], 42^e Colloque international de médecine nucléaire de langue française, Pointe-au-Pic, Québec, 30 sept.-7 oct.
- Grandcoing A., Roch P., Rehel J.-L., Aubert B. (2011) Apport d'un réaménagement partiel d'un service de médecine nucléaire vis-à-vis de la radioprotection, 8^e Congrès national de radioprotection « SFRP 2011 », Tours, 21-23 juin.
- ICRP Publication 66 (1994) Human respiratory tract model for radiological protection, *Ann. ICRP* **24** (1-3).
- IRSN (2011) La radioprotection des travailleurs : Expositions professionnelles aux rayonnements ionisants en France : Bilan 2010, Rapport DRPH/DIR/2011-19.
- Witschger O., Fabriès J.-F. (2005) Particules ultra-fines et santé au travail, 1 Caractéristiques et effets potentiels sur la santé, *Hygiène et sécurité au travail* 199, 21-35, INRS ND 2227.