

Que deviennent les radionucléides chez l'homme et dans son environnement ?*

Henri Métivier** directeur de recherches, membre du comité 2 de la CIPR

Summary : *What do the radionuclides become in man and in his environment ?*

Humans are radioactive and live surrounded by radioactivity. This radioactivity results from natural and man-made radionuclides. The biological effects of these radionuclides, incorporated either by ingestion or inhalation, is the same regardless of their origin, but is greatly affected by their physical and chemical form. To increase the level of radiological protection, the International Commission for Radiological Protection recommends that the physical and chemical properties of radionuclide pollutants be taken into consideration, hence according chemists the importance they deserve in this multidisciplinary world.

Mots clés : *Radionucléides, homme, environnement, radioprotection.*

Key-words : *Radionuclides, man, environment radiological protection.*

Ne dites pas à Robert Guillaumont que je fais de la radioprotection, il me croit encore radiochimiste. Telle est la raison de cet article présenté dans le cadre de la célébration du centenaire de la découverte de la radioactivité par la Société Française de Chimie.

L'homme est radioactif et baigne dans la radioactivité ; les activités nucléaires, qu'elles soient industrielles ou médicales peuvent augmenter cette radioactivité et l'irradiation de l'homme qu'il soit membre du public ou travailleur. Les règles actuelles de la radioprotection ont pour objectif de limiter aussi bas que raisonnablement possible cette irradiation sans pour autant entraver ces activités si elles sont bénéfiques.

La référence à l'irradiation naturelle est incontournable et sera au cœur de cet exposé mais, dans le cadre de la Société Française de Chimie, l'accent sera porté plus spécialement sur

l'apport de la chimie et de la radiochimie dans un monde qui ne peut être efficace que pluridisciplinaire.

Les règles de la radioprotection sont toutes issues des recommandations d'une organisation internationale non gouvernementale, la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) dont les membres sont cooptés, tous les quatre ans, sur des bases de reconnaissance internationale. Ces experts le sont à titre personnel et ne représentent, théoriquement, ni les intérêts de leur pays ni ceux de leur employeur. La pérennité de cette institution, créée en 1928, prouve que cette indépendance a été globalement conservée.

Ces recommandations ont pour l'instant toujours été reprises, plus ou moins rapidement, par les états ; ainsi, les dernières recommandations publiées en 1990 ont été reprises par l'Union européenne le 13 mai 1996, sous forme de directives, qui devraient être transformées par les États membres en textes nationaux avant le 13 mai 2000.

Le système de radioprotection se base sur trois grands principes fondamentaux : la justification qui stipule que toute activité doit apporter un bénéfice à titre individuel ou collectif ; le principe d'optimisation qui demande que les irradiations supplémentaires liées à ces activités soient aussi basses que raisonnablement possible, compte tenu des facteurs économiques et sociaux ; et, enfin, le principe de limitation qui interdit qu'une pratique ne conduise à une irradiation du public ou des travailleurs supérieure à des limites recommandées par la CIPR. Dans l'encadré sont rappelées les définitions des grandeurs et unités utilisées en radioprotection. Dans ses derniers textes, sous l'impulsion de son comité 2, chargé du calcul des doses reçues par irradiation, la CIPR a demandé que le calcul des doses, et par conséquent l'estimation du risque, soit la plus réaliste possible et prenne mieux en compte les caractéristiques physico-chimiques des polluants. C'est dans ce

* Exposé présenté à la Journée de conférences organisée par la SFC, le 15 mai 1997 à la Maison de la Chimie à Paris, dans le cadre de la célébration du Centenaire de la découverte de la radioactivité par Henri Becquerel.

** Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), BP 6, 92265 Fontenay-aux-Roses Cedex.
Tél. : 01.46.54.75.40.
Fax : 01.46.54.79.71.

Grandeurs et unités utilisées en radioprotection

Activité :

Le nombre de désintégrations par unité de temps. Le becquerel (Bq) est le nom spécial de l'unité de désintégration : $1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$.

Dose absorbée :

La dose absorbée est la quantité d'énergie délivrée par les radiations ionisantes à la matière de masse dm , ainsi $D = de/dm$, le nom spécial pour l'unité de dose absorbée est le gray (Gy).

Dose absorbée à l'organe :

La dose absorbée étant définie en un point, la CIPR a introduit (Publication 71) la notion de la dose absorbée à l'organe qui est la moyenne de la dose absorbée en chaque point de l'organe. Cette définition s'avère utile pour mieux définir la dose moyenne à l'organe lorsque l'irradiation est hétérogène ; irradiation neutronique ou alpha.

Dose équivalente à l'organe :

La dose équivalente à l'organe $H_{T,R}$ dans un tissu T liée à l'irradiation par le rayonnement R est donnée par l'équation :

$$H_{T,R} = W_R D_{T,R}$$

où $D_{T,R}$ est la dose absorbée à l'organe T par l'irradiation R et W_R le facteur de pondération¹ lié à la nature du rayonnement R.

La dose équivalente totale, H_T , est la somme de $H_{T,R}$ pour tous les types de rayonnement.

Le facteur de qualité étant sans dimension, l'unité est la même que pour la dose absorbée ; J.kg^{-1} et son nom spécial est le sievert (Sv).

Dose efficace :

La dose efficace est la somme des doses équivalentes pour chaque organe ou tissu de l'organisme pondérées par un facteur dépendant de la sensibilité aux effets stochastiques du tissu irradié W_T . Ces facteurs de pondération² étant normalisés, leur somme est égale à 1.

La dose efficace s'exprime donc par l'expression :

$$E = \sum_T W_T H_T$$

Le facteur de pondération tissulaire étant sans dimension, l'unité est la même que pour la dose absorbée et la dose équivalente à l'organe ; J.kg^{-1} et son nom spécial est comme pour la dose équivalente à l'organe le sievert (Sv).

Quantités de radioprotection spécialement liées à la contamination interne

Dose équivalente engagée :

La dose équivalente engagée $H_T(t)$ est l'intégrale dans le temps du débit de dose équivalente dans un tissu ou organe

particulier, où t est le temps d'intégration en années, de 50 ans pour les adultes et de l'incorporation à l'âge de 70 ans pour les enfants.

Dose efficace engagée :

La dose efficace engagée est la somme des doses équivalentes engagées où t est le temps d'intégration en années, de 50 ans pour les adultes et de l'incorporation à l'âge de 70 ans pour les enfants.

Limite annuelle d'incorporation (LAI) :

Pour un radionucléide donné, c'est l'activité incorporée en un an conduisant à la dose efficace engagée de 20 mSv. La LAI n'est plus donnée dans les publications de la CIPR les plus récentes (67, 68, 69 et 74). Sont données les doses par unité d'incorporation (DPUI) que le législateur peut transformer en LAI en faisant le rapport avec la limite de 20 mSv. Cette modification dans l'expression des facteurs de doses est faite pour rappeler qu'une LAI peut être spécifique à une pratique si le calcul des DPUI à conduit, pour ces pratiques spécifiques, à des valeurs différentes de celles données par défaut par la CIPR. Il appartient aux autorités nationales de valider le mode d'établissement de ces LAI spécifiques.

Limite dérivée de concentration d'un radionucléide dans l'air (LDCA) :

C'est la concentration moyenne annuelle dans l'air inhalé qui, pour 2 000 heures de travail par an, entraîne une incorporation égale à la LAI (Bq/m^3).

Notes

¹La publication 60 de la CIPR attribue à chaque type de rayonnement les facteurs de pondération suivants :

- Photons de toutes énergies	1
- Électrons et muons de toutes énergies	1
- Neutrons énergie < 10 keV	5
10 - 100 keV	10
100 keV - 2 MeV	20
2 MeV - 20 MeV	10
> 20 MeV	5
- Protons autres que protons de recul, énergie > 2 MeV	5
- Alpha, fragments de fission, noyaux lourds	20

²La publication 60 de la CIPR attribue les facteurs de pondération tissulaires suivants pour les organes spécifiés :

- Gonades	0,20
- Moelle osseuse	0,12
- Colon	0,12
- Poumon	0,12
- Estomac	0,12
- Vessie	0,05
- Sein	0,05
- Œsophage	0,05
- Thyroïde	0,05
- Peau	0,01
- Surface osseuse	0,01
- Autres tissus ou organes	0,05

Pour des raisons de calcul, les « autres tissus ou organes » comprennent la glande surrénale, le cerveau, l'intestin grêle, les reins, les muscles, le pancréas, la rate, le thymus, et l'utérus.

contexte que la place de la chimie est essentielle pour mieux évaluer la dose et donc le risque après incorporation de radionucléides.

L'environnement, source de contamination

Il existe quatre sources de contamination de l'homme par des composés radioactifs : l'absorption digestive, l'inhalation et, pour les travailleurs, l'absorption cutanée et la blessure. L'inhalation et la voie digestive seront pour les populations, liées à l'incorporation de radionucléides naturels ou artificiels suite aux rejets autorisés des industries nucléaires. Ces rejets en situation normale sont toujours très faibles et bien en deçà de la radioactivité naturelle. Nous avons vu par le passé qu'ils pouvaient devenir importants, lors d'accidents tel celui de Tchernobyl. Pour les travailleurs, les contaminations seront le plus souvent liées à l'inhalation de composés radioactifs, les techniques de protection font que les niveaux de contamination resteront le plus souvent très faibles. La blessure, en général en boîte à gants, beaucoup plus rare, pourra conduire par contre à des contaminations importantes.

La figure 1 explique le cheminement des radionucléides dans l'environnement et comment ils peuvent atteindre l'homme. En cas de rejet nucléaire, l'homme peut être irradié par immersion dans le panache, par irradiation liée au dépôt sur le sol, mais aussi, pour les situations à long terme, par la contamination de la chaîne alimentaire. Ainsi, les essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère ont rejeté jusqu'en 1963, près de 4,2 tonnes de plutonium dans l'atmosphère. Ces rejets ont contaminé toutes les populations de l'hémisphère nord, entre 10 à 20 Bq par individu ; en moyenne, 10 % de cette contamination avait pour origine l'inhalation de particules et 90 % l'ingestion de produits alimentaires contaminés par les retombées sur le sol des particules émises. Dans le cadre de l'accident de Windscale en 1957, l'ingestion était également une source importante de contamination potentielle, mais les autorités britanniques ont pris rapidement des mesures de restriction de la

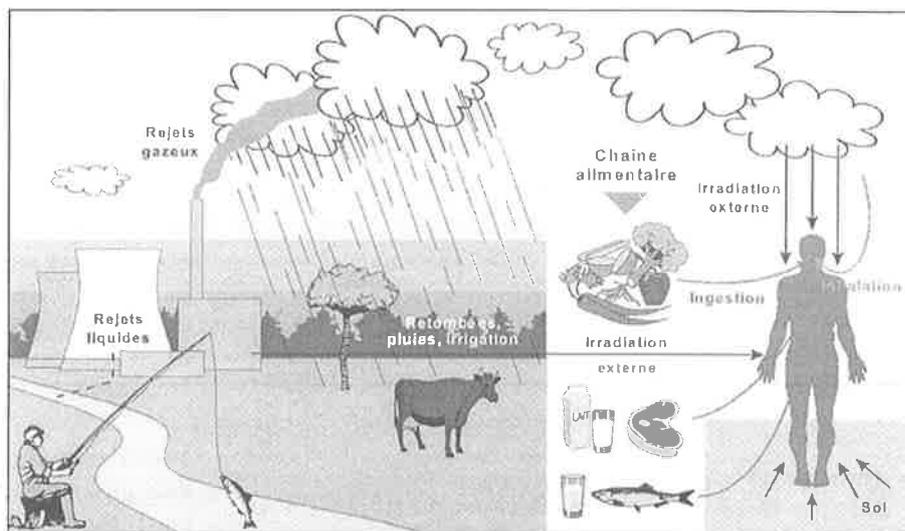


Figure 1 - Les différentes voies d'exposition du public.

consommation du lait pour limiter la contamination des populations, plus particulièrement celle des enfants, par l'iode radioactif émis.

Les mouvements et la distribution des radionucléides dans un écosystème terrestre sont contrôlés par différents mécanismes où la physico-chimie des polluants joue un rôle important.

Si faibles soient-ils, les rejets des usines sont mesurables par les techniques radiochimiques. Nous connaissons ainsi le devenir des masses d'eau en Manche et Mer du Nord et avec grande précision les impacts dans ces mers des différentes sources de contamination que sont les usines de Sellafield ou de la Hague, mais aussi les eaux de ruissellement des sols contaminés par l'accident de Tchernobyl (figure 2).

Ces études ont montré que les rejets de l'usine de la Hague n'atteignaient pas les côtes anglaises entraînées, par un courant fort en Manche, vers la Mer du Nord. Nous savons maintenant que les eaux entrant en Manche sont légèrement contaminées par les rejets de

Sellafield en mer d'Irlande, par contournement d'une partie de ces eaux, de l'Irlande et de l'Islande par la côte ouest du Groenland.

Des mesures effectuées par l'IPSN en 1991-1993 ont montré que la contamination des eaux de la Manche dans le Nord Cotentin par le plutonium était de $10-30 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$, valeur qu'il faut comparer à la teneur en uranium naturel qui est de $39 \cdot 10^{-3} \text{ Bq.L}^{-1}$.

Au niveau des sols, la concentration moyenne en plutonium est de $0,1-1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ dans la couche supérieure de l'hémisphère nord. Des niveaux plus élevés existent sur des lieux d'accidents, $2\,500 \text{ Bq.kg}^{-1}$ à Rocky Flats (Colorado) $10\,000 \text{ Bq.m}^2$ à Palomarès en Espagne.

La figure 3 montre les niveaux de contamination en ^{137}Cs sur le sol européen après l'accident de Tchernobyl.

La contamination de la chaîne alimentaire conduit pour les actinides à des résultats opposés en mer ou sur le continent. En mer, les organismes vivants ont le plus souvent un effet concentrateur. En fin de chaîne, la

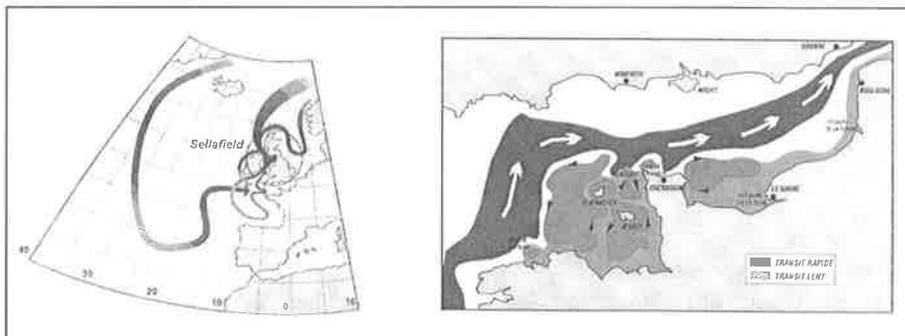


Figure 2 - Impact des usines de Sellafield et de la Hague, dans les mers proches.



Figure 3 - Dépôt de ^{137}Cs en Europe dû à l'accident de Tchernobyl (source Atlas Européen, DG XII).

concentration dans les êtres vivants sera supérieure à celle de l'eau. Le bigorneau est un exemple typique qui s'est illustré par son rôle dans la contamination d'un groupe critique anglais par du plutonium, il y a une vingtaine d'années. En 1996, la concentration en plutonium dans les algues du Nord Cotentin était de $0,05$ à $0,18 \text{ Bq.kg}^{-1}$, soit 100 000 fois plus que dans l'eau de mer, dans les patelles elle était de $0,014$ à $0,03 \text{ Bq.kg}^{-1}$ soit 10 000 fois plus que dans l'eau.

A l'inverse, le transfert terrestre est une succession de dilutions successives, qui conduit, toujours pour le plutonium, à des concentrations des aliments 10^6 à 10^9 inférieures à la concentration au niveau du sol ; le transfert du sol à la plante n'est jamais supérieur à 1.10^{-3} , tout comme celui de la plante à l'animal, et si nous mangeons ces animaux, le transfert intestinal est au plus de 5.10^{-4} . Le risque pour l'homme sera donc négligeable.

Le site de fixation au niveau du vivant est aussi un facteur important pour la contamination de l'homme. Le césium se fixe dans la chair ou le muscle, l'iode au niveau du lait, et ces deux éléments présentent des coefficients de transferts assez élevés tout au long de la chaîne alimentaire ; la dilution sera faible, leurs radionucléides seront des risques potentiels élevés

pour l'homme. A l'inverse, un poisson ou un mammifère terrestre contaminé par du Pu, Ra ou Sr, ne seront pas un risque important pour l'homme car ces radionucléides se fixent au niveau du squelette, qui est non consommé.

A l'exception des régions contaminées de l'ex-URSS, la source d'irradiation interne la plus importante pour les populations résulte de l'inhalation du

radon, issus des sols radifères. La figure 4 montre la concentration moyenne en radon dans les habitats européens en fonction des différentes régions.

Plus anecdotiques, bien que significatives, sont les concentrations de radionucléides dans les eaux minérales. Le tableau I, obtenu à partir de valeurs publiées par l'OPRI, donne les valeurs des concentrations en radionucléides des eaux minérales françaises les plus connues.

La chimie des traces et la complexation

Il est maintenant acquis que la concentration en radionucléide est un facteur essentiel pour expliquer le devenir biologique de certains actinides et tout particulièrement celui du plutonium. A forte concentration, si le plutonium est sous forme de nitrate, il forme des colloïdes et précipite dans l'organisme, au niveau du site d'entrée : sa migration vers les autres organes, os et foie par exemple, en est ralentie. A faible concentration, il est plus fortement complexé par les ions citrates, présents dans les fluides biologiques et notamment dans le sang à la concentration de 10^{-5} M : il migre plus facilement vers le foie et l'os.

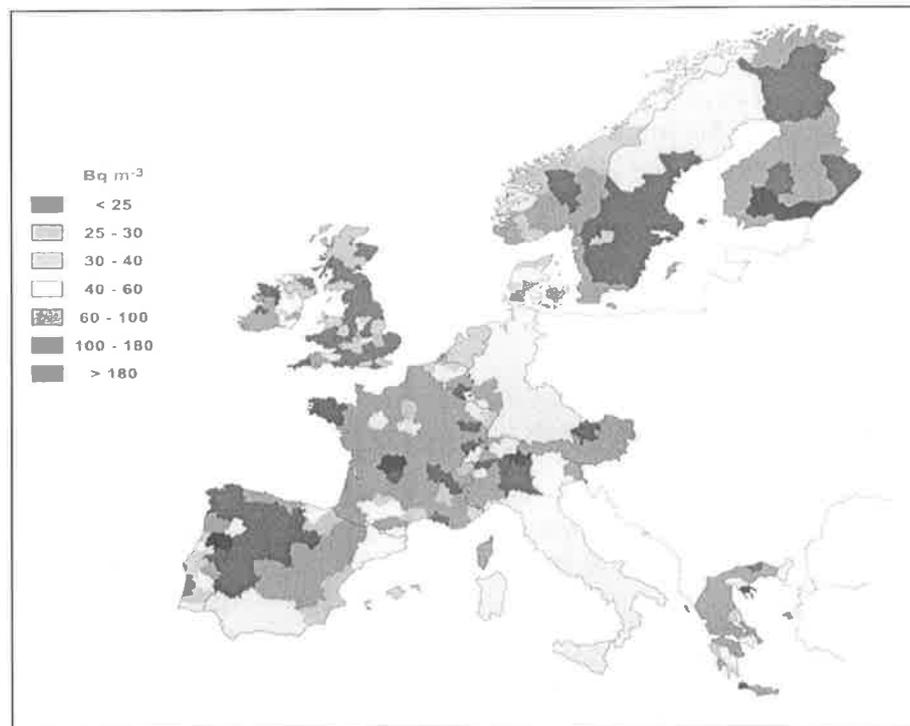


Figure 4 - Concentration de radon à l'intérieur des bâtiments en Europe (source CCE).

Tableau I - Activité de plusieurs eaux minérales françaises (mBq.L⁻¹) [Rémy et Lemaitre, 1990].

Radionucléide	Évian Cachat	Volvic	Contre- xéville	Vittel	Perrier Vergèze	St Yorre Royale	Badoit St Galmier
²²⁶ Ra	40	40	27	29	26	250	240
²²⁸ Ra	4	4	2,7	2,9	2,6	500	170
²³⁴ U	15	12	19	15	40	130	2 500
²³⁵ U							44
²³⁸ U	15	12	19	15	40	26	900
²¹⁰ Pb	28	28	19	20	18	175	168
²¹⁰ Po	16	16	10	11	10	100	96

Il y a donc deux « chimies du plutonium », celle du chimiste dans les laboratoires ou lors de contaminations très importantes, mais aussi une chimie des traces, largement dominée par les ligands présents dans les fluides biologiques ; c'est celle que l'on rencontrera le plus souvent.

Il existe une relation directe entre la forme physico-chimique complexante et son devenir dans l'organisme.

La stabilité du complexe citrate avec le radionucléide est un point clef dans le devenir du radionucléide. Injecté à forte concentration, le citrate de thorium, par exemple, pas assez stable, forme des colloïdes et précipite au niveau du foie. Injecté à faible concentration, le thorium reste sous forme monomérique et se dépose dans l'os. Cette partition entre os et foie, les deux principaux organes de dépôt, est également dépendante de la stabilité du complexe citrique pour les lanthanides. Plus le complexe est stable, plus grande sera la fixation osseuse (figure 5). Ceci s'explique par le fait que le débit sanguin dans le foie est plus élevé qu'au niveau de l'os, et les complexes les moins stables, résidant moins longtemps dans le sang, se fixeront en priorité dans l'organe le plus irrigué.

dépendra de deux facteurs, sa période radioactive d'une part, et son temps de séjour dans l'organisme d'autre part (période biologique). Pour le plutonium 239 par exemple, ce temps de séjour est proche de notre durée de vie, il faut près de 100 ans pour éliminer la moitié du plutonium fixé dans l'os, de 20 à 40 ans pour éliminer la moitié du plutonium fixé dans le foie. Pour le césium 137 il faut de 80 à 100 jours, la femme

éliminant le césium plus vite que l'homme, cette différence semblant plus liée à la masse musculaire qu'à un effet de sexe. Il faut environ 10 jours pour éliminer la moitié du tritium incorporé, moins de 5 jours pour l'enfant.

La figure 7a montre la concentration en plutonium des populations de l'hémisphère nord contaminées par le plutonium des retombées des essais d'armes en fonction du temps. Sur la figure 7b sont portées les charges corporelles en césium 137 des populations suédoises après les mêmes essais d'armes puis après l'accident de Tchernobyl. Dans ce cas, la période d'élimination reflète la période de biodisponibilité du césium dans l'alimentation, supérieure à la période biologique du césium d'un individu.

Il faut bien séparer la notion de temps de séjour d'un radionucléide et son incorporation dans l'organisme, le plutonium l'illustre très bien. Une fois fixé

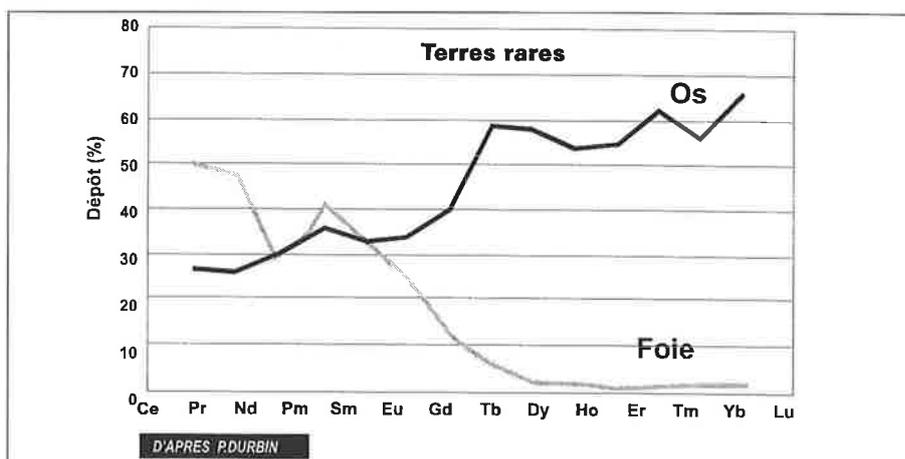


Figure 5 - Influence de la constante de stabilité du complexe citrique sur la nature du dépôt au niveau osseux ou hépatique.

La biocinétique et le calcul des doses reçues

La figure 6 illustre de manière simplifiée le cheminement des radionucléides dans l'organisme selon la porte d'entrée.

Lorsqu'un individu incorpore un radionucléide, l'irradiation continue même après l'arrêt de la contamination. Si la période radioactive du radionucléide est longue, la dose d'irradiation

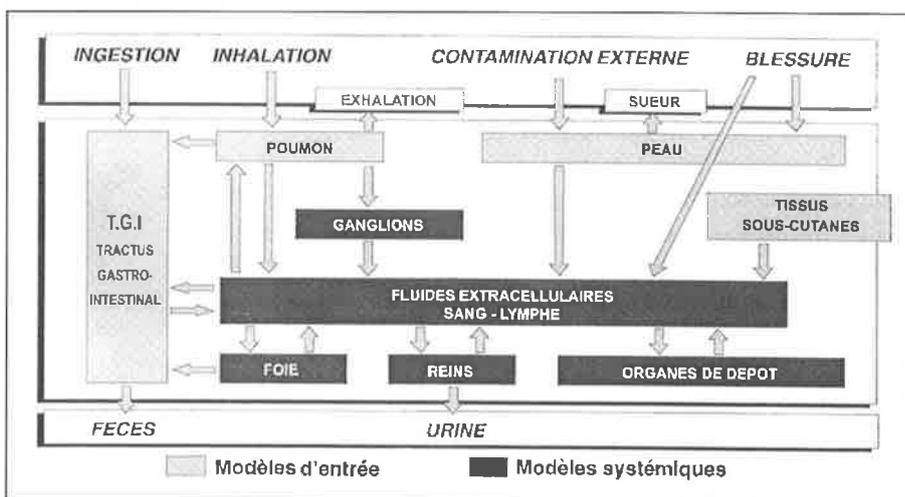


Figure 6 - La notion de modèle.

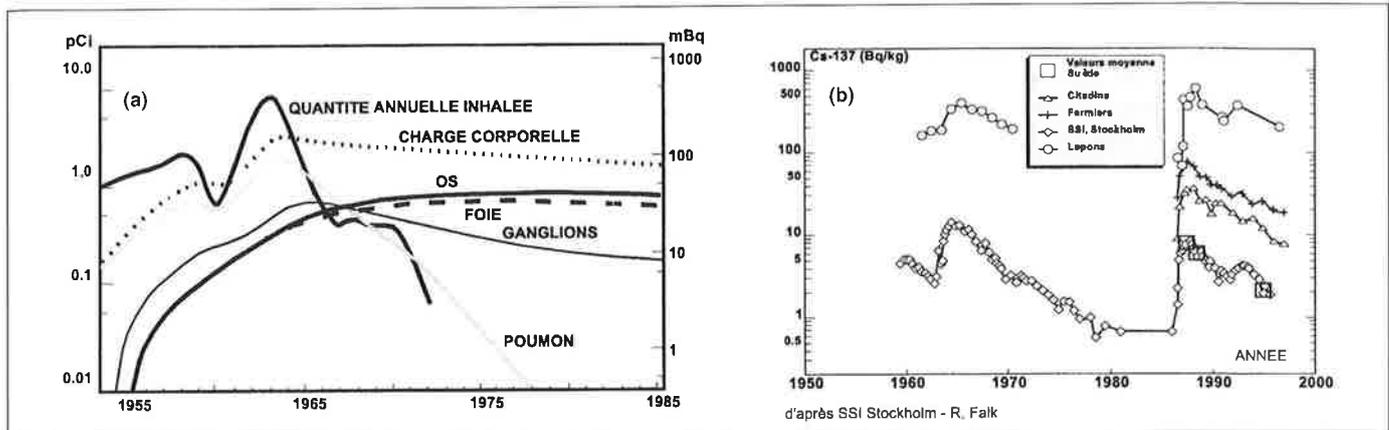


Figure 7 - Concentration du ²³⁹Pu dans la population de l'hémisphère nord (7a) et du ¹³⁷Cs en Suède (7b).

dans l'os, le plutonium y reste longtemps, mais la quantité qui y sera transférée peut varier selon qu'il se trouve dans un aliment ou sous forme d'oxyde. Par exemple, si l'on ingère un aliment contaminé par 10 000 Bq de plutonium, 5 Bq passeront la barrière intestinale et 2 Bq se retrouveront dans l'os. Sous forme d'oxyde, ce sera 50 à 100 fois moins. Ces 2 Bq s'élimineront lentement. A l'inverse, si nous incorporons 10 000 Bq de tritium ou de césium, ils se retrouveront tous dans le sang, mais le tritium s'éliminera avec une période moyenne d'environ 10 jours, le césium avec une période de 80 à 100 jours. Le calcul des doses tient compte de ces différences.

Pour prendre en compte ce temps de séjour dans l'organisme, la CIPR a introduit, il y a une vingtaine d'années, le concept de dose engagée qui est la somme des doses reçues annuellement, pendant 50 ans pour un adulte, après une incorporation. Cette dose engagée, exprimée en sievert, permet d'évaluer le risque d'apparition d'un cancer radioinduit après une telle contamination. Chez l'enfant, on calcule cette dose jusqu'à ce qu'il atteigne 70 ans, quel que soit son âge le jour de la contamination. Ce concept permet d'évaluer le risque qu'encourt réellement une personne contaminée, puisqu'on calcule la dose qu'elle recevra durant pratiquement toute son existence.

Le calcul de ces doses engagées est difficile car il est impossible de faire des mesures de la radioactivité d'une personne contaminée pendant 50 ans. Il nous faut donc bâtir des modèles dosimétriques pour effectuer ces calculs.

Ces modèles sont développés par le comité 2 de la CIPR et repris par prati-

quement toutes les autorités sanitaires dans le monde. La CIPR a récemment réactualisé la majorité de ces modèles dosimétriques, forts de nombreuses expérimentations faites chez l'animal, enrichis du retour d'expérience lié au suivi des travailleurs contaminés ou des populations après des accidents tels Goiania ou Tchernobyl par exemple.

Les modèles biocinétiques de la CIPR se répartissent en deux types ; les modèles d'entrée et les modèles systémiques.

Les modèles d'entrée, alimentaire, respiratoire et blessure, sont fortement influencés par la physico-chimie des formes incorporées. A l'inverse, les modèles systémiques qui décrivent le devenir des éléments à partir de leur forme circulante dans le sang seront des modèles par famille d'éléments, alcalins, alcalino-terreux, actinides, etc., puisqu'une fois transformés sur le site

d'entrée, le devenir biologique des radionucléides dépendra essentiellement de la forme chimique circulant dans le sang.

Le modèle respiratoire (publication 66 de la CIPR, 1994) permet de connaître, lorsque nous inhalons des poussières, le site et l'importance du dépôt au niveau du système respiratoire : bronches, bronchioles, alvéoles pulmonaires, selon la taille des particules et leur devenir biologique après solubilisation et complexation *in situ*. Les fonctions d'épuration représentant la solubilisation et le transfert vers les autres organes seront largement dépendantes de la physico-chimie des polluants.

Les modèles systémiques qui décrivent le cheminement des radionucléides après leur incorporation ont été révisés dans les publications 67 et 69 de la CIPR. La figure 8 décrit le modèle systémique du plutonium.

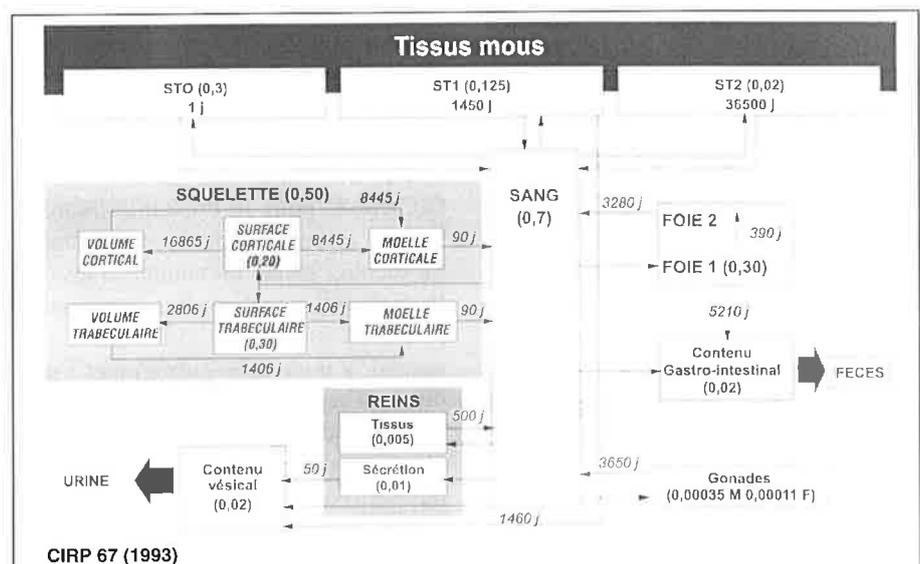


Figure 8 - Modèle systémique du plutonium selon la CIPR 67.

La CIPR, utilisant ces nouveaux modèles, a recalculé les coefficients de dose après inhalation ou ingestion (le coefficient de dose permet l'expression en sievert de la dose engagée après incorporation de 1 Bq de radionucléide, cette dose permettra l'estimation du risque d'apparition d'un cancer suite à cette incorporation). Pour ce faire, elle prend des valeurs moyennes obtenues à partir des connaissances du moment. On appelle ces coefficients, coefficients par défaut : ils sont utilisés lorsque nos connaissances du contaminant sont limitées. Pour améliorer encore la qualité de la radioprotection, la CIPR a souhaité que les calculs de doses après une contamination soient plus réalistes et permettent plus facilement d'évaluer le risque de chacun, selon où il travaille et réside, selon ses habitudes alimentaires, son âge, son état de santé. Les coefficients de doses sont alors appelés spécifiques. La physico-chimie du polluant restant le plus souvent l'élément déterminant de ces évaluations.

La décontamination

Lorsqu'une incorporation de composés solubles a lieu, quelle que soit la voie d'entrée, le dépôt au niveau des organes se fait à partir du sang. Pour un élément tel le plutonium, le dépôt osseux ou hépatique est à l'échelle de la durée de vie quasi irréversible, et le traitement médical difficile. Il appartiendra d'agir vite, soit au niveau du site d'entrée, soit au niveau sanguin, pour bloquer le transfert du sang vers les organes de dépôt et éliminer le radionucléide par les excréments. Dans le cas du plutonium, le médecin utilise un chélateur, le DTPA, qui complexe fortement et sélectivement le radionucléide, et l'élimine par la voie urinaire.

Dans le cas du ^{137}Cs , qui se fixe dans la masse musculaire, le médecin agira au niveau intestinal en complexant par le bleu de Prusse (ferrocyanure ferrique) le césium qui, comme le potassium, effectue un incessant aller-retour entre le plasma sanguin et la lumière intestinale. Le Cs ainsi piégé n'est pas réabsorbé par la paroi intestinale et est éliminé via les fèces.

Dans le cas du tritium, le traitement consistera à éliminer l'eau tritiée en buvant une quantité d'eau supérieure

aux besoins physiologiques (1,2 litre par jour) permettant par un effet de dilution d'éliminer l'eau tritiée par la voie urinaire. On peut ainsi ramener la période biologique de l'eau tritiée à 2 à 3 jours.

Quelle est la caractéristique d'un bon chélateur, utilisable pour la décontamination interne ? Nous nous attacherons plus particulièrement aux actinides qui sont les radionucléides les plus radio-toxiques.

Le chélateur doit former avec le Th, U, Np, Pu, Am, par exemple, des complexes ayant une grande constante de stabilité aux pH physiologiques. Le complexe doit être éliminé par la voie urinaire ou fécale ; il doit, s'il n'est pas sélectif, complexer faiblement les métaux essentiels à la vie ; Fe, Co, Zn, Cu, Mn, Ca pour éviter toute toxicité. C'est la différence entre les constantes de stabilité des premiers et des seconds qui déterminera l'efficacité. Le DTPA forme un complexe fort avec le plutonium (10^{24}), cette constante n'est que de 10^{12} pour le Ca, et 10^{15} pour le Zn

Compte tenu de ces différentes valeurs de constantes de stabilité du DTPA avec ces métaux, le DTPA injecté sous forme acide serait très toxique, par complexation du Ca. Injecté sous forme de Ca-DTPA, sa toxicité devient faible et n'est observée qu'à long terme, car il élimine Cu, Mn, et Zn dont les constantes de stabilité sont comprises entre 10^{12} et 10^{15} . Le médecin utilisera le Ca-DTPA comme traitement d'attaque puis le Zn-DTPA si le traitement doit être prolongé. Dans ces conditions, le DTPA est un agent non toxique ; un travailleur américain, contaminé par de l'américium en 1976, a ainsi reçu 583 g de ce produit pendant 18 mois sans aucun effet secondaire.

De très bon chélateurs, tel le LICAM-C pour le Pu, un calixarène pour U, n'ont pas tenu leurs promesses. Le premier forme un complexe avec le Pu, instable au pH rénal et reconcentre le Pu au niveau de cet organe. Le second, s'il complexe fortement l'uranium, n'est pas éliminé par les voies naturelles d'excrétion et reste au niveau du compartiment sanguin jusqu'à sa métabolisation. Ces deux excellents chélateurs ont été abandonnés.

La quête du chélateur idéal, si elle reste notre objectif permanent, ne peut

en aucun cas s'affranchir de règles simples. Un chélateur à spectre large, non sélectif, ne sera utilisable sans risque qu'au niveau sanguin. Toute tentative pour le faire pénétrer dans la cellule, si là est le site de dépôt, se soldera par un échec, car non sélectif, il chélate tous les oligo-éléments essentiels à la vie et sera par conséquent très toxique.

Cette approche par la voie de la chélation connaît toutefois des limites, elle a toujours plus ou moins échoué avec le neptunium pour lequel des nouvelles recherches s'imposent. Elle reste totalement inefficace pour les composés insolubles, mais en cas d'inhalation de fortes quantités de particules insolubles toxiques, la technique du lavage pulmonaire pallie avec succès à cet échec ; l'excision chirurgicale est tout aussi efficace en cas de blessure.

L'impact en dose

La dose efficace est un concept simplificateur qui permet d'exprimer, en mode commun, les effets des rayonnements sur l'homme, que ces effets soient la conséquence d'irradiations externe ou interne, en vue de déterminer le risque d'apparition d'effets tardifs, essentiellement des cancers (voir *encadré*).

La CIPR, pour recommander des limites acceptables, se base, au titre du principe de précaution, et bien que ce concept ne soit pas unanimement reconnu par les spécialistes, sur une relation linéaire sans seuil entre la dose reçue et le risque d'apparition des cancers. Ainsi, il est pris comme hypothèse que toute dose de rayonnement peut provoquer un cancer, seule la fréquence d'apparition dépend de la dose. Il est donc nécessaire d'évaluer en terme de doses les contaminations des travailleurs et du public. Il est intéressant de les comparer aux sources d'origine naturelle, inévitables.

La limite pour les travailleurs est actuellement fixée à 100 mSv sur 5 ans, avec la possibilité d'atteindre 50 mSv en une seule année si la moyenne sur 5 ans est respectée. Pour les populations, la CIPR recommande qu'on n'ajoute pas à l'irradiation naturelle plus de 1 mSv, cette limite ne s'appliquant pas aux actes médicaux pour les-

quels un bénéfice pour le patient est attendu.

L'exposition des populations est largement dominée par le radon (figure 9), la valeur moyenne pouvant d'une région à une autre varier de plus d'un facteur 2. Viennent ensuite l'irradiation par les matériaux terrestres et les rayonnements cosmiques et l'ingestion de radionucléides naturels. L'homme contient entre 4 000 à 6 000 Bq de ^{40}K . Plus anecdotique est la consommation d'eaux minérales qui peuvent délivrer des doses engagées allant de 0,03 mSv à 0,3 mSv selon leur origine, pour une consommation annuelle de 1,2 litre par jour.

Conclusion

Cent ans après Henri Becquerel et Pierre et Marie Curie, la chimie reste toujours bien vivante dans le monde de la radioprotection. Les derniers textes de la CIPR, dont l'esprit et la lettre ont été repris par la directive européenne de 1996, ont même renforcé le besoin de connaître la physico-chimie des polluants pour mieux encore calculer la dose reçue par les travailleurs et les populations, suite à l'incorporation de radionucléides qu'ils soient d'origine humaine ou naturelle.

Références

– ICRP Publication 60 (Annals of the ICRP, vol. 21, n° 1-3), *1990 recommendations of the International Commission on Radiological Protection*, Pergamon Press, Oxford, 1991.

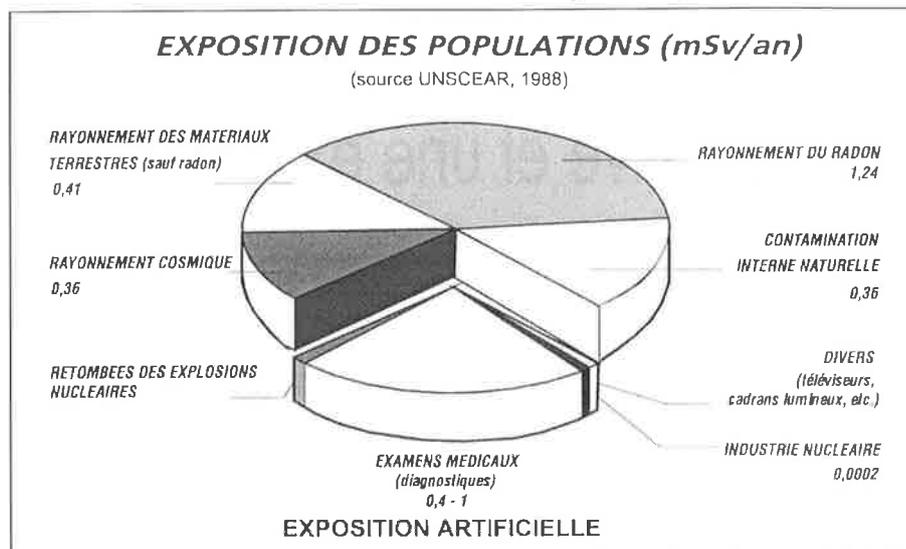


Figure 9 - Exposition des populations (source UNSCEAR).

- ICRP Publication 67 (Annals of the ICRP, vol. 23, n° 1-3), *Human respiratory tract model for radiological protection*, Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994.
- ICRP Publication 67 (Annals of the ICRP, vol. 23, n° 3/4), *Age-dependent doses to members of the public from intakes of radionuclides : part 2, Ingestion dose coefficients*, Elsevier Science Ltd, Oxford, 1994.
- ICRP Publication 69 (Annals of the ICRP, vol. 25, n° 1), *Age-dependent doses to members of the public from intakes of radionuclides : Part 3, Ingestion dose coefficients*, Elsevier Science Ltd, Oxford, 1995.
- *Sources and effects of ionizing radiation*, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 report to the general assembly, with annexes, United Nations sales publication E.94.IX.2, United Nations, New York, 1993.
- Directive 96/29/Euratom du conseil du 13 mai 1996 fixant les normes de base relative à la protection sanitaire de la

- population et des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants.
- Principes et normes de radioprotection, Henri Métivier, *Techniques de l'ingénieur*, B 3904, 1996, 5.
- *Environmental radioactivity. From natural, industrial, and military sources*, Fourth Edition, M. Eisenbud, T. Gesell, Academic Press, San Diego, 1997.
- Rémy M.L., Lemaître N., Eaux minérales et radioactivité, *Hydrogéologie*, 1990, 4, p. 267-268.
- Métivier H., Colle C., Germain P., Les actinides et l'homme dans son environnement, *Clefs CEA*, 1995, 31, p. 62-71.
- Belot Y., Roy M., Métivier H., *Le Tritium, de l'environnement à l'homme*, Collection IPSN, Éditions de physique, Les Ulis, 1996.
- Guéguéniat P., Germain P., Métivier H., *Radionuclides in the oceans, Input and inventories*, Collection IPSN, Éditions de physique, Les Ulis, 1996.
- *Tchernobyl, Dix ans déjà : impact radiologique et sanitaire*. Rapport OCDE/AEN, OCDE, 1996.