

ANNEXE

COMPARAISON DE LA RADIOTOXICITÉ DE L'URANIUM, DU PLUTONIUM
ET DU THORIUM

Roger Belbéoch

L'incorporation de radioéléments par ingestion et inhalation conduit à l'irradiation prolongée de différents organes et tissus. Pour les travailleurs la durée considérée est de 50 ans.

Pour un becquerel de chaque radionucléide incorporé les experts calculent, à partir de modèles, l'«équivalent de dose engagé», dose reçue en 50 ans au niveau des différents organes et tissus. Par l'intermédiaire de coefficients de pondération ils en déduisent l'«équivalent de dose efficace engagé» comme si l'organisme entier était irradié d'une façon uniforme.

La vérification de la validité des modèles utilisés par les experts est quasiment impossible étant donné la complexité des mécanismes mettant en jeu le métabolisme et la rétention des radionucléides dans les organes et tissus.

Pour les travailleurs on aboutit à une double limitation des doses annuelles :

- Afin de prévenir l'apparition de dommages non stochastiques (effets dits déterministes car ils dépendent de la dose reçue et très peu des individus) à certains organes ou tissus (surfaces osseuses, poumons etc...) l'incorporation ne doit pas conduire à un équivalent de dose engagé à ces organes dépassant 0, 50 sievert par an (50 rem). [La limite de dose est de 0, 15 Sv pour le cristallin].

- La dose d'irradiation rapportée au corps entier, l'«équivalent de dose efficace», ne doit pas dépasser 50 millisievert par an (5rem) afin de limiter d'une façon «acceptable» les effets stochastiques, non déterministes, c'est à dire les cancers mortels pour les travailleurs et les effets génétiques pour leur descendance.

On obtient les limites annuelles d'incorporation (LAI) par inhalation et ingestion - appelées aussi limites d'incorporation annuelles (LIA) - à l'aide de ces deux limitations de dose en retenant la quantité de radionucléide la plus faible conduisant soit à 0, 5 Sv (50 rem) à l'organe ou tissu le plus irradié, soit à 50 mSv (5 rem) corps entier.

Pour le public les LAI sont 10 fois plus faibles que celles des travailleurs.

Depuis novembre 1990 la CIPR recommande une limite annuelle de dose pour les travailleurs ne dépassant pas 20 mSv / an (publication CIPR 60, 1991). Toutes les LAI sont désormais basées sur le risque stochastique (cancers mortels et effets génétiques) et les valeurs de ces limites d'incorporation annuelles par ingestion et inhalation ont été publiées pour les travailleurs dans la CIPR 61. Bien que la limite de dose annuelle ait été diminuée de 50 à 20 mSv, certaines LAI ont été augmentées par rapport aux valeurs précédentes.

Les valeurs des LAI du public n'ont pas encore été publiées. En toute logique elles devraient être 20 fois plus faibles que celles recommandées pour les travailleurs puisque pour le public la dose limite annuelle est de 1 mSv.

Les limites d'incorporation annuelles (LIA ou LAI) définissent ainsi les quantités qu'il ne faut pas dépasser par ingestion et inhalation, pour chaque radioélément afin d'assurer un certain niveau de protection radiologique soit pour les travailleurs soit pour les individus de la population. Ces limites sont calculées par les instances «responsables» à partir de la **radiotoxicité** des éléments. Le détriment sanitaire considéré par ces «responsables» comme «acceptable» pour quantifier ces LAI dépend, pour une large part, de considérations économiques qui sont en contradiction avec la protection sanitaire des individus. Les LAI ne fournissent donc pas une échelle valable si l'on veut établir une échelle absolue de radiotoxicité (détriment sanitaire par incorporation d'une certaine quantité de radioélément)

mais ces LAI peuvent fournir une échelle **relative** de radiotoxicité (du moins celle acceptée par les responsables officiels).

Autrement dit, si un individu ingère ou inhale une quantité de radioélément inférieure à la LAI il sera soumis à un risque sanitaire que les experts officiels considèrent comme «acceptable» (sans avoir demandé son avis à cet individu). Si deux radioéléments ont des LAI voisines cela veut dire que les experts officiels considèrent ces radioéléments comme ayant des radiotoxicités voisines. Plus la radiotoxicité est grande, plus la LAI correspondante est petite. Les LAI définies par les textes réglementaires fournissent donc l'échelle «officielle» de radiotoxicité des éléments.

Pour comparer le thorium, l'uranium et le plutonium on dispose de deux échelles :

- celle donnée dans l'annexe IV du décret n°66-450 du 20 juin 1966 «relatif aux principes généraux de protection contre les rayonnements ionisants», modifié par le décret n°88-521 du 18 avril 1988 (J O du 6 mai 1988). Les limites définies par ce décret sont conformes à celles indiquées dans la directive européenne du 3 septembre 1984. (Quelques différences : la directive européenne ne donne pas les limites d'incorporation annuelles par ingestion pour les travailleurs. D'autre part elle donne les LAI pour l'uranium et le thorium naturels ce que ne fait pas la réglementation française. La notation caractérisant les différents composés chimiques est différente).

- celle donnée dans la publication 61 de la Commission Internationale de Protection Radiologique (1990) qui servira de base aux futures directives européennes.

Les deux textes cités ici définissent les LAI pour l'**exposition professionnelle**.

I - LIMITES D'INCORPORATION ANNUELLE (LAI) POUR LES TRAVAILLEURS DANS LA REGLEMENTATION FRANCAISE ACTUELLE (DÉCRET DU 18 AVRIL 1988)

	LAI (Bq/an) Ingestion		LAI (Bq/an) Inhalation		
	a	b	c	d	e
Thorium 232	30 000	40	100		
Thorium 228	200 000	400	600		
Thorium naturel	non mentionné dans le tableau				
Uranium 235	500 000	7 000 000	50 000	30 000	2 000
Uranium 238	500 000	8 000 000	50 000	30 000	2 000
Uranium 234	400 000	7 000 000	50 000	30 000	1 000
Uranium naturel	non mentionné dans le tableau				
Plutonium 239	200 000	2 000 000	200	500	

Définition des lettres (a), (b), (c), (d), (e).

Thorium :

- (a) tous les composés du thorium
- (b) tous les composés sauf ceux indiqués en (c)
- (c) oxydes et hydroxydes

Uranium :

- (a) composés inorganiques de l'uranium soluble dans l'eau (uranium hexavalent)
- (b) composés relativement insolubles (UF_4 , UO_2 , U_3O_8)
- (c) UF_6 , UO_2F_2 , UO_2 , $UO_2(NO_3)_2$
- (d) UO_3 , UF_4 , UCl_4
- (e) UO_2 , U_3O_8

Plutonium :

- (a) tous les composés courants du plutonium autres que ceux indiqués à la note (b)
- (b) oxydes et hydroxydes de plutonium
- (c) tous les composés courants du plutonium sauf PuO_2
- (d) PuO_2

On peut simplifier la lecture de ce tableau en retenant, pour établir l'échelle de radiotoxicité, les LAI par inhalation des oxydes;

	LAI (Bq/an)	Normalisation par rapport à Pu LAI(Pu)/LAI(Th ou U)
Thorium 232 Thorium 228	100 600	5 0, 8
Uranium 235 Uranium 238 Uranium 234	2 000 2 000 1 000	0, 25 0, 25 0, 5
Plutonium 239	500	1

Le rapport de la LAI du plutonium à la LAI du radioélément donne la radiotoxicité de l'élément rapportée à celle du plutonium. Ainsi le thorium 232 est 5 fois plus radiotoxique que le plutonium 239, l'uranium 235 et l'uranium 238 sont 4 fois moins et l'uranium 234, 2 fois moins radiotoxique que le plutonium 239.

Nota : les LAI du thorium naturel et de l'uranium naturel ne sont pas données dans le décret français. En se référant à la directive européenne de 1984 on en déduit que la radiotoxicité du thorium naturel est voisine de celle du thorium 232 et que celle de l'uranium naturel est voisine de celle de l'uranium 238.

II - LIMITES D'INCORPORATION ANNUELLE RECOMMANDÉE EN 1990 PAR LA COMMISSION INTERNATIONALE DE PROTECTION RADIOLOGIQUE (PUBLICATION CIPR 61)

Remarques préliminaires

1- Ce sont finalement ces limites qui seront adoptées dans la réglementation européenne car celle-ci se fonde sur les recommandations de la CIPR avec, il est vrai, beaucoup de retard.

2 - La CIPR ayant abaissé la limite annuelle de dose pour les travailleurs de 50 mSv (5 rem) à 20 mSv (2 rem), on aurait pu s'attendre à voir les LAI réduites d'un facteur 2, 5. La CIPR a réexaminé ses concepts et ses modèles mathématiques qui permettent de passer des limites de dose aux LAI. Certaines LAI sont divisées par des facteurs supérieurs à 2, 5, d'autres par des facteurs inférieurs à 2, 5 mais certaines LAI sont même augmentées. On

arrive ainsi à une situation assez paradoxale : la CIPR diminue les limites de dose et en profite pour augmenter les limites d'incorporation de certains radionucléides.

Pour les travailleurs les LAI par inhalation recommandées dans la récente publication CIPR 61 sont les suivantes :

		LAI par inhalation (Bq/an)	
Thorium 232	W	90	[40]
	Y	90	[100]
Thorium 228	W	500	[400]
	Y	200	[600]
Thorium naturel		non défini	
Uranium 235	D	80 000	[50 000]
	W	10 000	[30 000]
	Y	600	[2 000]
Uranium 238	D	90 000	[50 000]
	W	10 000	[30 000]
	Y	600	[2 000]
Uranium 234	D	80 000	[50 000]
	W	10 000	[30 000]
	Y	600	[1 000]
Uranium naturel		non défini	
Plutonium 239	W	300	[200]
	Y	300	[500]

Nous avons indiqué en italique et entre crochets les LAI correspondant aux valeurs du décret français du 18 avril 1988.

Signification des lettres D, W, Y :

Pour décrire l'élimination par le poumon des poussières radioactives (avant passage dans le sang ou le tractus gastro-intestinal) on caractérise les aérosols radioactifs par leur période de rétention dans le poumon :

D moins de 10 jours

W de 10 à 100 jours

Y supérieure à 100 jours

Ces périodes dépendent de la nature chimique du composé inhalé.

Nous indiquerons la correspondance des dénominations D, W, Y, avec les notations (b), (c), (d), (e), du décret français qui figurent dans le tableau de la page 2 pour les LAI par inhalation.

Thorium	Y	oxydes et hydroxydes	(c)
	W	autres composés	(b)
Uranium	D	UF ₆ , UO ₂ F ₂ , UO ₂ (NO ₃) ₂	(c)
	W	composés moins solubles, comme UO ₃ , UF ₄ , UCl ₄	(d)
	Y	composés très insolubles (UO ₂ , U ₃ O ₈)	(e)
Plutonium	Y		(d)
	W	oxyde de plutonium (PuO ₂) tous les autres composés	(c)

D'après le tableau on voit que les LAI des composés D de l'uranium ont été augmentées, malgré la réduction des limites de dose. Il en est de même pour les composés W du thorium et du plutonium. Sous ces formes, tous ces radioéléments se fixent préférentiellement sur les surfaces osseuses ce qui les rend particulièrement dangereux.

En retenant les LAI par inhalation des radioéléments sous la forme d'oxydes afin de déterminer l'échelle de radiotoxicité nouvellement adoptée par la CIPR on obtient le tableau suivant :

	LAI (Bq/an)	Normalisation par rapport à Pu LAI(Pu)/LAI(Th ou U)
Thorium 232	90	3
Thorium 228	200	1, 5
Uranium 235	600	0, 5
Uranium 238	600	0, 5
Uranium 234	600	0, 5
Plutonium 239	300	1

L'échelle ainsi obtenue est assez voisine de celle adoptée antérieurement par la CIPR et qui a servi de base à la réglementation européenne de 1984 et au décret français de 1988. Notons que la radiotoxicité de l'uranium 238 s'est rapprochée de celle du plutonium 239.

Conclusion

- 1- L'échelle de radiotoxicité établie à partir des limites d'incorporation annuelle aboutit aux conclusions suivantes :
 - a) le thorium 232 et le thorium naturel sont les radioéléments les plus radiotoxiques. (Seul le césium 132 est plus radiotoxique d'un facteur 10 environ, mais comme cet isotope a une durée de vie de 6, 5 jours il n'est présent que dans les déchets très «frais». Bien sûr cet élément peut être important pour les habitants au voisinage d'un réacteur en détresse).
 - b) l'uranium 238, l'uranium naturel, l'uranium appauvri ont une radiotoxicité voisine de celle du plutonium. Ces éléments ne sont que 2 fois moins toxiques que le plutonium.
- 2 - La directive européenne de 1984 et la réglementation française de 1988 introduisent une classification des radioéléments en 4 groupes suivant leur radiotoxicité supposée :
 - groupe 1 : très forte radiotoxicité. Dans ce groupe figurent Pu 239, U234, Th 228
 - groupe 2 : forte radiotoxicité. Dans ce groupe figurent Th 232, Th naturel
 - groupe 3 : radiotoxicité modérée
 - groupe 4 : faible radiotoxicité. Dans ce groupe figurent U235, U238, U naturel et U appauvri
- 3 - Cette classification est incohérente en ce qui concerne l'uranium puisque sa radiotoxicité déduite des LAI par inhalation le place très près du plutonium. L'incohérence est encore plus flagrante si on considère l'uranium 234. Cet isotope est classé dans le groupe 1 à très forte radiotoxicité. Or les autres isotopes 238 et 235 de l'uranium qui ont des LAI identiques à l'isotope 234,

donc qui ont des toxicités identiques, sont classés dans le groupe 4 à faible radiotoxicité.

Nota : les radioéléments du groupe 4 ont des radiotoxicités déduites des LAI dont les valeurs sont 100 à 1 000 fois (voire davantage) plus faibles que celles du plutonium.

- 4 - Le thorium 228 est classé dans le groupe 1 ce qui est conforme à sa radiotoxicité.
- 5 - Le thorium 232 est classé dans le groupe 2 ce qui est incohérent car il est plus radiotoxique que l'isotope 228 du thorium qui, lui, a été classé dans le groupe 1. L'incohérence existe aussi pour le thorium naturel.
- 6 - La réglementation française a retenu la classification des 4 groupes de radiotoxicité pour définir les procédures administratives relatives aux installations qui manipulent ou stockent les radioéléments. C'est ainsi que cette incohérence dans la définition des radiotoxicités permet aux exploitants concernés par l'uranium d'échapper pratiquement à toute contrainte sérieuse.