

# INCERTITUDES SUR LES DOSES ET LES DPUI

P. Fritsch

Laboratoire de Radiotoxicologie, CEA/DSV/DRR, BP 12, 91680 Bruyères le Châtel

Aujourd'hui, aucune incertitude n'est systématiquement attribuée aux principaux paramètres utilisés en radioprotection, telles, les doses équivalentes, les doses efficaces par unité d'incorporation (DPUI) et les limites annuelles d'expositions (LAI). Ceci rend difficile toute hiérarchisation des « risques » par unité d'incorporation, en fonction de la nature et des propriétés physico-chimiques des radionucléides.

Durant la dernière décennie, de nombreuses études ont contribué à une meilleure évaluation de ces incertitudes. Le but de ce travail consiste à résumer les données de la littérature et les résultats obtenus dans le cadre de recherches en cours sur ce sujet. Comme exemple, l'exposition de travailleurs à des aérosols renfermant du plutonium est ici illustrée.

## 1- Incertitudes sur les propriétés physico-chimiques des aérosols

L'utilisation d'impacteurs en cascade a permis une évaluation directe du diamètre médian en activité (DAMA) des aérosols. Cependant, les prélèvements ont été effectués essentiellement dans des boîtes à gants<sup>1-2</sup>. Pour les oxydes d'actinides peu solubles, les DAMA sont compris entre 3 et 8,5  $\mu\text{m}$  (par défaut 5 $\mu\text{m}$ ) avec un écart type géométrique ( $\sigma_g$ ) souvent inférieur à la valeur par défaut (2,5). Néanmoins, en cas d'incident, les aérosols peuvent également résulter de la remise en suspension de particules déposées sur différentes surfaces. Dans ce cas, leur agrégation pourrait entraîner une augmentation significative de la taille des aérosols.

Des études sont en cours sur l'évaluation de la taille des aérosols, durant la fabrication du combustible MOX, après analyse par autoradiographie des filtres des balises de surveillance atmosphérique<sup>3-4</sup>. Pour des filtres « positifs » (> 0.5Bq), cette méthode s'avère particulièrement sensible au poste de la rectification. Dans ce cas, pour plus d'1 incident sur 2, le DAMA est supérieur à 10 $\mu\text{m}$  (min 4 $\mu\text{m}$ , max 50 $\mu\text{m}$ ). Des résultats analogues ont été obtenus en amont de la rectification, mais, les DAMA demeurent approximatifs, du fait de la présence d'un mélange de particules d' $\text{UO}_2$  et de  $\text{PuO}_2$ . Cette étude montre, qu'en cas d'incident, le DAMA apparaît plus dépendant des circonstances de la contamination que de la nature du poste de travail. D'où l'intérêt d'une évaluation systématique du DAMA en cas d'incident entraînant une contamination interne significative, afin de mieux préciser la valeur des doses engagées.

Pour un composé générique, tels les oxydes d'U et de Pu, les incertitudes sur la valeur des paramètres de dissolution sont relativement importantes ( $s_s$  taux de dissolution lente  $\sigma_g$  de l'ordre de 3)<sup>5</sup>. En revanche, pour un composé donné, elles apparaissent beaucoup plus faibles ( $s_s$  écart type 20-30%)<sup>6</sup>.

## 2- Incertitudes sur le dépôt des aérosols

De très nombreux paramètres sont introduits dans le modèle du dépôt des aérosols, et leur variabilité a été précédemment évaluée en ce qui concerne : 1) Leurs propriétés physico-chimiques, tels, le  $\sigma_g$ , la densité et la forme des particules<sup>7</sup>, 2) Leur inhalabilité et l'efficacité de leurs dépôts aéro et thermodynamiques au sein des principales régions du tractus respiratoire<sup>8-9</sup>, 3) L'anatomie, la physiologie et l'activité des individus<sup>9-10</sup>, et 4) La répartition des dépôts parmi différentes sous régions : mucus, gel sous le mucus et macrophages de l'interstitium<sup>5</sup>. Par ailleurs, dans une gamme d'activités proches de 1LAI, pour les composés de forte activité spécifique, le nombre total de particules présent dans l'aérosol constitue également une source importante d'incertitudes<sup>11</sup>.

Pour un aérosol monodispersé, les incertitudes demeurent limitées, sauf pour les régions les plus profondes (alvéoles Al et bronchioles bb), où elles augmentent considérablement avec la taille des aérosols, lorsqu'elle devient supérieure à  $1\ \mu\text{m}$ <sup>9</sup>. Par exemple, pour un diamètre aérodynamique de  $5\ \mu\text{m}$ , le  $\sigma_g$  des dépôts dans Al et bb sont respectivement de 2,3 et 2,4. Ces incertitudes augmenteraient lorsque l'aérosol est polydispersé<sup>12</sup>. Ainsi, pour un DAMA de  $5\ \mu\text{m}$ , les dépôts ne correspondent plus à des lois log normale et pour Al, le rapport entre la valeur 97,5 et 2,5% de la distribution est de l'ordre de  $10^{16}$ . Il faut cependant souligner que, dans cette gamme de taille, les auteurs obtiennent des valeurs de dépôts profonds très inférieures de celles rapportées dans la CIPR<sup>8</sup>.

Les études d'incertitudes peuvent être biaisées par le choix de la variabilité des paramètres, et par leur interdépendance. Pour le dépôt des aérosols, nous avons repris les variations précédemment décrites<sup>9</sup>. La seule modification concerne la variation de la fréquence respiratoire, et non du volume tidal, car elle permet de faire varier cette fréquence selon l'activité des individus. Par ailleurs, dans le calcul des dépôts, toute valeur négative est remise à zéro. Des incertitudes similaires à celles précédemment rapportées pour des aérosols monodispersés<sup>9</sup> ont été obtenues. Les incertitudes sur le dépôt d'aérosols polydispersés s'avèrent beaucoup plus faibles. Dans une gamme de DAMA entre 0,1 à  $50\ \mu\text{m}$ , la médiane des dépôts est égale aux valeurs de la CIPR<sup>8</sup>. Jusqu'à  $1\ \mu\text{m}$ , le  $\sigma_g$  des dépôts au sein des différentes régions est voisin de 1,5. Il augmente ensuite graduellement en atteignant, pour un DAMA de  $50\ \mu\text{m}$ , une valeur de 2,3 dans Al, 2,9 dans bb, et 2,0 dans les bronches. En revanche, il diminue au sein des régions extra thoraciques (plateau à 1,2). Ce type de résultat s'explique du fait, qu'au delà d'un diamètre aérodynamique de  $30\text{-}40\ \mu\text{m}$ , il n'y a plus d'incertitudes sur les dépôts profonds, car ils sont nuls.

### 3- Incertitudes sur le devenir biologique des dépôts

Le devenir des radionucléides déposés après inhalation est contrôlé par 3 principaux mécanismes : 1) Leur transport, 2) Leur dissolution, et 3) Le devenir des radionucléides solubles transférés dans le sang. Pour le transport, les incertitudes<sup>5</sup> ont été évaluées à partir des données de la CIPR<sup>8</sup>. Pour la dissolution, elles ont été déjà décrites. Enfin, pour le devenir systémique, l'application d'une loi log normale aux différentes constantes de temps décrivant le transfert d'un compartiment à un autre, serait justifiée. Ainsi, pour le Pu, une valeur du  $\sigma_g$ , égale à 1,75, est appliquée<sup>14</sup>. Cette variabilité a été utilisée dans notre étude.

### 4- Incertitudes sur les doses et sur le risque cancer

Les incertitudes sur les doses équivalentes pulmonaires ont été évaluées pour des aérosols monodispersés de  $^{239}\text{PuO}_2$  et d'oxydes d'uranium. Elles sont exprimées sous forme de rapport 95 sur 5%. Elles concernent, tout d'abord, le nombre de rayonnements  $\alpha$  émis dans les différentes régions source<sup>5</sup>, puis les doses équivalentes, en tenant compte d'une variabilité de l'épaisseur de différentes régions, du poids des régions cibles et du risque relatif d'apparition de cancer selon les régions<sup>15</sup>. Les incertitudes sur le nombre de désintégrations et sur les doses apparaissent sensiblement équivalentes. Ceci s'explique par la non additivité des incertitudes et l'interdépendance de nombreux paramètres. Entre 0,1 et  $2\ \mu\text{m}$ , les rapports sont voisins de 10, sauf pour les bronches et les ganglions thoraciques, où ils sont beaucoup plus élevés. Ils augmentent ensuite graduellement pour atteindre des valeurs comprises entre 100 et 1000, lorsque le diamètre aérodynamique est égal à  $10\ \mu\text{m}$ .

Nous avons entrepris une démarche analogue pour des aérosols polydispersés de  $^{239}\text{Pu}$  modérément (type M) ou faiblement soluble (type S), en calculant également les DPUI. Seules les variations rapportées par Farfan et al<sup>5</sup> n'ont pas été appliquées. Pour le type S et des DAMA entre 0,1 et  $50\ \mu\text{m}$ , les rapports sont sensiblement constants : 6 et 4 pour les doses équivalentes extra thoraciques et thoraciques, 4 pour les DPUI. Pour le type M, ces valeurs varient respectivement entre 9 et 100, entre 4 et 12 et entre 2 et 5. D'une manière générale, l'utilisation de facteurs de pondération tend à diminuer les incertitudes.

Communément, les DPUI sont assimilées à un risque cancer. En fait, dans le cas d'aérosols renfermant des émetteurs  $\alpha$ , il faut être prudent quant à cette assimilation, car une variation du risque cancer, sur plus d'un facteur 10, est observée, selon les propriétés physico-chimiques des aérosols<sup>16</sup>. Le risque diminue lorsque l'activité  $\alpha$  des aérosols augmente. Une des hypothèses permettant d'interpréter ce phénomène est l'hétérogénéité de la distribution de dose au sein des différents compartiments cible du tractus respiratoire, qui n'est pas pris en compte dans le calcul de la dose équivalente. Cette hétérogénéité de l'irradiation pourrait également conduire à une surévaluation des doses pour des organes cibles qui sont considérés comme homogène pour le calcul de dose, tel la thyroïde<sup>17</sup>.

## 5- Intérêt de la connaissance des incertitudes

Les incertitudes sur les doses et DPUI évaluées en utilisant les modèles en vigueur sont, dans le cas du <sup>239</sup>Pu, relativement faibles et varient en fonction de la taille des aérosols. Pour le type S, elles sont telles que la connaissance précise de la taille des aérosols n'est pas justifiée dans une gamme de DAMA allant de 0,5 à 2 $\mu$ m. Au-delà de 5 $\mu$ m, cette connaissance est importante du fait d'une forte diminution des doses avec la taille des aérosols. En revanche, pour le type M, la connaissance des paramètres de dissolution diminue considérablement les incertitudes. Ainsi, les études de sensibilité permettent d'identifier les paramètres les plus pertinents à prendre en compte dans le cadre des études expérimentales en toxicologie, en fonction de la nature du radiocontaminant.

Des études sont en cours afin de préciser, pour les principaux radioéléments d'intérêt (actinides, I, Co...), les incertitudes selon leurs propriétés physico-chimiques, le mode de contamination et l'âge, applicables aux travailleurs et à la population. Par ailleurs, les incertitudes seront également prises en compte afin d'estimer les niveaux d'exposition et les doses en utilisant des modèles ascendants adaptés au <sup>238-239-240-241-242</sup>Pu et à l'<sup>241</sup>Am.

## Références

- 1 Dorrian MD and Bailey MR. Partide size distributions of radioactive aerosols measured in the workplaces. *Radiat Prot Dosim* 60:119-133; 1995.
- 2 Ansoberlo E, Chazel V, Hengé-Napoli MH, Pihet P, Rannou A, Bailey MR, Stradling N. Determination of the physical and chemical properties, biokinetics, and dose coefficients of uranium compounds handled during nuclear fuel fabrication in France. *Health Phys* 82:279-289; 2002.
- 3 Ramounet-Le Gall, B., Fritsch, P., Abram, M.C., Rateau, G., Grillon, G., Guillet, S., Baude, S., Bérard, P., Ansoberlo, E. and Delforge J. Mesure de paramètres spécifiques pour le calcul de dose après inhalation d'aérosols renfermant des éléments transuriniens. *Can J Physiol Pharmacol* 80:727-732; 2002.
- 4 Fritsch, P. and Guillet, K. Granulometry of aerosols containing transuranium elements at the work place: an estimate using autoradiographic analysis. *Ann Occup Hyg* 46:sup1,292-295; 2002.
- 5 Bolch WE, Huston TE, Farfan EB, Vemetson WG, Bolch WE. Influences of parameter uncertainties within the ICRP-66 respiratory tract model: Partide clearance. *Health Phys* 84:421-435; 2003.
- 6 Ramounet-Le Gall B., Rateau G., Abram M.C., Grillon G, Ansoberlo E, Bérard P, Delforge J. and Fritsch P. In vivo measurement of Pu dissolution parameters of MOX aerosols and related uncertainties on DPUI values. *Radiat Prot Dosim* 105:153-156; 2003
- 7 Harvey RP, Hamby DM. Uncertainty in particulate deposition for 1 $\mu$ m AMAD partides in an adult lung model. *Radiat Prot Dosim* 95:239-247; 2001.
- 8 ICRP. Human respiratory tract model for radiological protection. Oxford, UK: Pergamon Press; ICRP Publication 66; 1994.
- 9 Bolch WE, Farfan EB, Huh CH, Huston TE, Bolch WE. Influences of parameter uncertainties within the ICRP-66 respiratory tract model: Particle deposition. *Health Phys* 81:378-394; 2001.
- 10 Layton DW. Metabolically consistent breathing rates for use in dose assessments. *Health Phys* 64:23-36; 1993.
- 11 Fritsch P. Uncertainties in doses due to the number of aerosol partides: study on <sup>239</sup>PuO<sub>2</sub> using default parameters for workers. *Health Phys* 87:416-422; 2004.
- 12 Aden, J. and Scott, B.R. Modeling variability and uncertainty associated with inhaled weapons-grade PuO<sub>2</sub>. *Health Phys* 84:726-736; 2003.

- 13 Fritsch, P. Uncertainties in aerosol deposition within the respiratory tract calculated according to ICRP recommendations: a study in adults. En preparation.
- 14 Luciani A, Doerfel H, Polig E. Uncertainty analysis of the urinary excretion of plutonium. *Radiat Prot Dosim* 105:383-386; 2003.
- 15 Farfan EB, Huston TE, Bolch WE, Vernetson WG, Bolch WE. Influences of parameter uncertainties within the ICRP-66 respiratory tract model: Regional tissue doses for  $^{239}\text{PuO}_2$  and  $^{238}\text{UO}_2/^{238}\text{U}_3\text{O}_8$ . *Health Phys* 84:436-450; 2003.
- 16 Fritsch P., Dudoignon N., Guillet K., Oghiso Y., Motier J.P. and Monchaux G. Does DPUI calculated for inhaled actinide oxides actually reflect the risk of malignant lung tumour induction? *Radiat Prot Dosim* 105:149-152; 2003.
- 17 Fritsch P., Champion C., Ménétier F. and Delforge J. Uncertainties on the committed equivalent dose to the thyroid as a function of age for different iodine isotopes. *Radiat Prot Dosim* 105:247-250; 2003.