



FICHE RADIONUCLEIDE

Plutonium

Aspects sanitaires

DIRECTION DE LA RADIOPROTECTION DE L'HOMME



Système de management
de la qualité IRSN certifié

FICHE RADIONUCLEIDE

Plutonium

Aspects sanitaires

Guillaume PHAN, François REBIERE, Jean-Michel DELIGNE, Jean-René JOURDAIN

Rapport SDI/2007-031

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion	
	Auteur(s)	Vérificateur*	Directeur de la DRPH	Directeur Général de l'IRSN
Noms	G. PHAN	J.R. JOURDAIN	P. GOURMELON	J. REPUSSARD
Dates	01/10/2007	05/11/2007	28/02/2008	
Signatures				

* Rapport sous assurance de la qualité

I. Caractéristiques

I.1. Physico-chimiques

Le plutonium (symbole chimique Pu), élément de numéro atomique égal à 94, se présente sous la forme d'un métal dur et argenté de densité 19,8 dont l'apparence est proche du fer. Ses points de fusion et d'ébullition sont respectivement de 640°C et de 3 300°C. Il se transforme au contact de l'air en oxyde de plutonium (PuO₂) et peut alors s'enflammer.

Le plutonium métal est attaqué par les acides mais résiste aux composés alcalins. Il peut se retrouver en solution aqueuse sous cinq états d'oxydation différents, de III à VII. Toutefois, l'état IV est prépondérant et le plus stable. Les composés les plus fréquemment rencontrés dans l'industrie sont les nitrates, les fluorures, les oxydes, ainsi que des complexes organiques.

I.2. Nucléaires

Le plutonium est le 6^{ème} élément de la série des actinides. Les 15 isotopes du plutonium (du plutonium 232 comprenant 94 protons et 138 neutrons au plutonium 246 comprenant 94 protons et 152 neutrons) sont tous radioactifs. Les plus fréquemment rencontrés dans l'industrie nucléaire sont les isotopes 238, 239, 240 et 241 (Tableau 1).

Tableau I : caractéristiques nucléaires des principaux isotopes du plutonium

Isotope	Période radioactive (ans)	Principal mode de décroissance	Energie moyenne des émissions (MeV)	Activité spécifique (Bq/g)
Plutonium 238	87,7	α	5,49	6,3.10 ¹¹
Plutonium 239	24 390	α	5,14	2,3.10 ⁹
Plutonium 240	6570	α	5,16	1,6.10 ¹¹
Plutonium 241	13,2	β-	5,27.10 ⁻³	3,3.10 ⁹

II. Origines

II.1. Naturelle

Le plutonium est en quasi-totalité d'origine artificielle mais peut se retrouver à l'état de traces dans des minerais d'uranium (²³⁹Pu) ou de terres rares (²⁴⁴Pu).

II.2. Artificielle

Trois sources principales sont à l'origine de la dissémination du plutonium dans l'environnement : les essais d'armes nucléaires, les accidents et les rejets d'installations nucléaires.

- Explosions nucléaires

La présence du plutonium à la surface de la terre et dans les eaux est principalement liée aux essais nucléaires atmosphériques, océaniques et dans une moindre mesure souterrains, réalisés entre 1945 et 1980. Ces retombées et émissions représentent environ 13 PBq (1 PBq = 10¹⁵ Bq) de ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu, dont 80 % dans l'hémisphère nord, 170 PBq de ²⁴¹Pu et 0,3 PBq de ²³⁸Pu, dont 60 % dans l'hémisphère sud (UNSCEAR, 1982).

- Accidents

En plus des retombées consécutives aux essais nucléaires, des chutes de satellites alimentés en énergie électrique nucléaire ont été à l'origine de la dissémination d'environ 100 TBq (1 TBq = 10¹² Bq) de ²³⁸Pu dans l'hémisphère sud. Deux accidents d'avions de type B52 ont donné lieu à une dissémination notable de ²³⁹Pu : 0,5 TBq en 1966 à Palomarés (Espagne) et 0,9 TBq en 1968 à Thulé (Groenland). Par ailleurs, des dispersions sont imputables à plusieurs accidents de

sous-marins entre 1965 et 2000. Enfin, les deux accidents de réacteurs de Windscale (Sellafield, Grande-Bretagne) en 1957 et de Tchernobyl (Ukraine) en 1986 ont également été à l'origine d'une dispersion significative de plutonium dans l'environnement.

- Emissions par les installations nucléaires

Aujourd'hui, les rejets les plus significatifs de plutonium dans l'environnement proviennent des usines du cycle du combustible nucléaire, telles que les installations du site de production de matériel nucléaire militaire et civil de la rivière Savannah (USA) ou les usines de retraitement du combustible usé de Trombay (Inde), de La Hague et de Marcoule (France), ou encore de Windscale (Grande-Bretagne). Néanmoins, ces rejets qui se font essentiellement sous forme d'effluents liquides restent faibles et réglementés. Par exemple, les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ mesurées dans le Rhône et provenant du drainage d'anciennes retombées sur le bassin versant du fleuve ou bien des rejets d'effluents de l'usine de retraitement de Marcoule ont varié de 0,3 à 0,03 Bq.m⁻³ entre 1961 et 1998. Les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ mesurées dans les eaux de la Seine entre 1980 et 1994 sont de l'ordre de 0,5 à 0,01 Bq.m⁻³.

III. Transfert à l'environnement et métrologie

III.1. Données environnementales

Après dépôt dans l'environnement, le plutonium peut se retrouver dans tous les constituants de la chaîne alimentaire. Cependant, ces transferts par voie alimentaire sont mal connus et considérés comme relativement faibles. Les facteurs de concentration du plutonium et ses potentiels de fixation sont généralement élevés mais très variables : ils diminuent des organismes inférieurs (plancton, algues) jusqu'aux organismes supérieurs (poissons). En milieu aquatique continental, comme en milieu terrestre, le plutonium apparaît majoritairement fixé sur les phases solides tels que les sédiments, les minéraux argileux ou encore les matières organiques des sols, notamment du fait de la formation de colloïdes dans lesquels les formes Pu(III) et Pu(IV) sont dominantes. En milieu marin, le plutonium est essentiellement présent à l'état d'oxydation V dans l'eau de mer et à l'état d'oxydation IV dans les sédiments. Le plutonium se présente également sous forme dissoute associée à de la matière organique soluble. De manière générale, les teneurs dans le milieu naturel sont en diminution et sont inférieures aux concentrations d'actinides d'origine naturelle.

III.2. Métrologie environnementale

Les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium sont mesurés dans les échantillons de l'environnement par spectrométrie alpha précédée d'une séparation radiochimique. Une mesure par scintillation liquide est également possible pour les isotopes 238 à 241.

Enfin, une discrimination isotopique peut être réalisée par des techniques de mesures spectroscopiques telles que l'ICP-MS.

IV. Utilisations industrielles

Les différents isotopes du plutonium sont produits à partir de l'uranium dans les réacteurs nucléaires. Deux principales applications industrielles sont développées à partir des isotopes 238 et 239.

Le plutonium 238 est utilisé comme source d'énergie thermoélectrique et entre dans la composition de batteries de stimulateurs cardiaques, de satellites ou encore de sondes spatiales.

Le plutonium 239 est essentiellement utilisé en tant que matière fissile dans les réacteurs électronucléaires pour la production d'électricité. En France et en Europe, il est employé sous forme d'un mélange d'oxydes appelé « MOX » résultant des opérations de traitement du combustible d'uranium usé.

En France, le plutonium est ainsi mis en œuvre dans les installations nucléaires de base, classées ou non (INB et INBS). Ces installations comprennent des réacteurs à eau pressurisés des centrales EDF,

des réacteurs expérimentaux, des usines de fabrication et de recyclage du combustible nucléaire ou encore des laboratoires de recherche (IRSN, CEA, AREVA...).

V. Modes d'exposition et devenir chez l'homme

La toxicité du plutonium est essentiellement d'origine radiologique. Les émissions de particules alpha et de neutrons (isotopes 238, 239, 240) ou bien de particules bêta (isotope 241) sont à l'origine d'une irradiation localisée ou globale (exposition externe) et/ou d'une contamination des organes et tissus atteints après incorporation dans l'organisme.

V.1. Exposition externe

Les coefficients de doses efficaces présentés ci-après (Tableau 2) sont issus du rapport du Federal Guidance n° 12 (1993) et sont applicables quel que soit l'âge de l'individu exposé.

Tableau II : coefficients de doses efficaces après irradiation externe

Isotope	Débit d'équivalent de dose (Sv.s ⁻¹)/(Bq.m ⁻³)		
	Immersion dans l'air	Dépôt	Immersion dans l'eau
Plutonium 238	4,88.10 ⁻¹⁸	8,38.10 ⁻¹⁹	1,14.10 ⁻²⁰
Plutonium 239	4,24.10 ⁻¹⁸	3,67.10 ⁻¹⁹	9,60.10 ⁻²¹
Plutonium 240	4,75.10 ⁻¹⁸	8,03.10 ⁻¹⁹	1,11.10 ⁻²⁰
Plutonium 241	7,25.10 ⁻²⁰	1,93.10 ⁻²¹	1,62.10 ⁻²²

V.2. Contamination externe de la peau et des muqueuses

Un dépôt sur les vêtements ou sur les surfaces corporelles peut être à l'origine d'une irradiation de la peau ou des muqueuses, en particulier lorsqu'il s'agit d'émetteurs de rayonnement bêta (isotope 241). Les rayonnements alpha sont peu pénétrants et arrêtés par l'épiderme (couche superficielle de la peau). Selon la nature physico-chimique des composés, l'incorporation des actinides à travers une peau saine (passage transcutané) peut se produire en l'absence de traitement, tout en restant généralement limitée (Bhattacharyya, 1992).

V.3. Exposition interne

- Biocinétique

Les différentes voies d'entrée possibles chez l'homme sont principalement l'inhalation et l'ingestion. Par ailleurs, des contaminations internes peuvent résulter de blessures chez les travailleurs de l'industrie nucléaires notamment ou d'un passage transcutané selon la nature chimique du composé. Quel que soit le mode de contamination, le plutonium se retrouve plus ou moins rapidement dans le sang et les fluides biologiques en fonction du type d'absorption (lent, moyen ou rapide), propre à la nature du composé et à sa forme physico-chimique. Les données relatives à la distribution et à la rétention du plutonium chez l'animal et chez l'homme sont présentées dans la publication 67 de la CIPR (ICRP 67, 1994).

L'inhalation de particules de plutonium constitue une source plus ou moins importante d'incorporation et d'irradiation du poumon, principal organe de rétention. Selon le modèle pulmonaire de la CIPR (ICRP 66, 1994), le transfert au sang dépend du diamètre des particules, de la surface spécifique et de la solubilité des composés définie par les coefficients d'absorption au sang. Les composés sont classés soit de type F (très transférable), de type M (moyennement transférable) ou de type S (très peu transférable). Les particules insolubles d'oxyde de plutonium par exemple sont solubilisées lentement au niveau des poumons d'où elles sont éliminées avec une période biologique d'environ 500 à 1000 jours. L'élimination se fait alors, soit par voie fécale après remontée mécanique des macrophages pulmonaires ou des particules inhalées, soit par transfert puis rétention des particules vers les ganglions thoraciques (Métivier, 1997).

Le plutonium est considéré comme peu transférable après ingestion. Chaque composé du plutonium est caractérisé par un facteur d'absorption gastro-intestinale f_1 qui lui est propre et dont les valeurs sont comprises entre 1.10^{-5} (composés les moins transférables de type S tels que les oxydes insolubles) et 5.10^{-4} (composés moyennement transférables de type M, tels que les nitrates) selon les publications 72 et 78 de la CIPR (ICRP 72, 1996 ; ICRP 78, 1997). Il faut cependant noter que ce coefficient d'absorption intestinal f_1 qui reste jusqu'à présent applicable et qui découle des anciens modèles respiratoire et alimentaire de la CIPR, sera par la suite recalculé et remplacé par l'appellation de facteur de transfert du tractus alimentaire, f_A qui tiendra compte du nouveau modèle de tractus alimentaire humain proposé par la publication 100 de la CIPR (ICRP 100, 2006)

S'agissant de l'incorporation du plutonium consécutive à un passage transcutané ou une blessure, il n'existe pas à la date de la mise à jour du présent document de modèle validé décrivant précisément le devenir du plutonium dans l'organisme. Néanmoins, il convient de souligner qu'une quantité plus ou moins importante de plutonium est susceptible d'atteindre la circulation sanguine en fonction de la forme physico-chimique et de la solubilité du ou des composés incriminés.

Au niveau du sang, le plutonium se lie majoritairement à la protéine transferrine. Plus de 80 % de la charge sanguine sont rapidement transférés aux organes cibles et une fraction résiduelle inférieure à 10 % est excrétée dans les urines. Le squelette et le foie représentent alors les 2 principaux organes de rétention au sein desquels est retrouvée environ 50 % et 30 % respectivement de la charge sanguine chez l'adulte. Une faible fraction est ensuite éliminée par la bile. La période biologique d'élimination du plutonium est en moyenne de l'ordre de 50 ans au niveau osseux et de l'ordre de 20 ans au niveau hépatique. Enfin, le remodelage osseux contribue au retour vers le sang d'une partie soluble du plutonium.

La période effective d'élimination d'un radionucléide déposé dans l'organisme ou bien dans un tissu particulier, se définit comme la combinaison de sa période biologique d'élimination (qui dépend des processus métaboliques de l'organisme) et de sa période de décroissance physique (qui dépend des caractéristiques nucléaires du radioélément) :

$$T_{eff} = \frac{T_{bio} \times T_{phys}}{T_{bio} + T_{phys}}$$

Avec T_{eff} : période effective d'élimination ; T_{bio} : période biologique d'élimination et T_{phys} : période physique d'élimination.

D'après la publication 30 de la CIPR (ICRP 30, 1988), la période effective d'élimination de l'isotope 239 peut être assimilée à sa période biologique compte tenu de sa très longue période physique (24390 ans). La période effective d'élimination des autres isotopes est généralement inférieure à la période biologique d'élimination ($T_{eff} < T_{bio}, T_{phys}$). Les données expérimentales obtenues chez l'animal montrent que la distribution et la rétention du plutonium au niveau du foie et du squelette peuvent varier en fonction de la forme physico-chimique du contaminant injecté dans la circulation sanguine (citrate, nitrate, particule insoluble de plutonium...) mais également en fonction de l'âge et de l'espèce animale étudiée (ICRP 48, 1986). Ainsi, de manière générale, les formes polymères de plutonium sont davantage retenues au niveau du foie que les formes monomères solubles et le dépôt au niveau osseux est plus important chez les jeunes animaux en croissance par exemple.

- Effets biologiques après incorporation dans l'organisme

Toxicité aiguë du plutonium

La toxicité chimique des isotopes du plutonium est masquée par leur toxicité radiologique. Les études réalisées sur les quelques personnes contaminées n'ont pas mis en évidence d'effet biologique significatif suite à une contamination interne de plutonium. Des pathologies cancéreuses ont cependant été observées chez l'animal après incorporation de quantités importantes de plutonium.

- Effets précoces

En ce qui concerne les effets précoces et déterministes, les valeurs de DL50 (dose létale entraînant le décès de 50 % des animaux contaminés) ont été déterminées après injection de solutions de plutonium chez le rongeur et après inhalation d'oxyde de plutonium chez le chien et le babouin (Tableau 3). La mort est généralement secondaire à une pneumonie interstitielle précoce suivie d'une fibrose pulmonaire tardive.

Tableau III : Doses létales entraînant le décès de 50% (DL50) des animaux contaminés par différentes formes physico-chimiques de ^{238}Pu ou ^{239}Pu

Isotope	Espèce	Mode de contamination	DL50	Intervalle de temps *	Références
Plutonium 238	Rat	Injection de citrate	6,0 MBq.kg ⁻¹ (9,5 µg.kg ⁻¹)	30 jours	Mahlum et Sikov, 1969
		Injection de nitrate	3,6 MBq.kg ⁻¹ (5,7 µg.kg ⁻¹)	30 jours	
Plutonium 239	Rat	Injection de citrate	3,6 MBq.kg ⁻¹ (1,6 mg.kg ⁻¹)	30 jours	Mahlum et Sikov, 1974
		Injection de nitrate	1,7 MBq.kg ⁻¹ (0,74 mg.kg ⁻¹)	30 jours	
	Homme**	Inhalation d'oxyde	21 MBq (9,0 mg)	30 jours	Métivier, 1997
			2,1 MBq (0,9 mg)	365 jours	
0,85 MBq (0,4 mg)	1000 jours				

* cet intervalle de temps correspond au temps au bout duquel le comptage des animaux décédés est réalisé

** estimation à partir de données animales (chien, babouin)

Les données du tableau 3 montrent qu'une quantité de l'ordre d'une dizaine de milligrammes est susceptible d'être à l'origine du décès d'une personne ayant inhalé en une seule fois des oxydes de plutonium

- Effets tardifs

Pour ce qui est des effets tardifs et aléatoires, les principales pathologies observées suite à une incorporation de plutonium sont des tumeurs pulmonaires, des tumeurs osseuses et des tumeurs hépatiques.

L'apparition de tumeurs pulmonaires a été mise en évidence chez le chien et le rat après inhalation de composés peu solubles tels que les oxydes de plutonium. Une relation dose-effet a de plus été mise en évidence avec un seuil d'apparition des tumeurs pour une dose au poumon autour de 1 Gy. Cette dose correspondrait chez l'homme à un dépôt pulmonaire d'environ 200 000 Bq d'oxyde de ^{239}Pu . D'autres pathologies non cancéreuses telles que des fibroses pulmonaires ont également été observées pour des doses supérieures à 5 Gy.

En revanche, aucune pathologie cancéreuse n'a été observée au niveau des ganglions lymphatiques chez les animaux ayant inhalé de l'oxyde de plutonium. Ainsi, aucun élément ne permet d'affirmer que le plutonium puisse induire des leucémies chez l'homme : ainsi, un seul cas de leucémie a été observé avec une relation de cause à effet chez une race particulière de souris ayant reçu des injections de nitrate de plutonium (Métivier, 1997).

Des expérimentations chez le chien et les rongeurs montrent que le squelette est la principale cible du plutonium après son transfert dans le sang : il peut alors être responsable de tumeurs osseuses essentiellement de type ostéosarcomes avec un seuil d'apparition estimé entre 0,9 et 1,4 Gy. Une étude épidémiologique récente montre que les ostéosarcomes induits par le plutonium se localisent préférentiellement au niveau du squelette axial, contrairement aux tumeurs spontanées qui surviennent majoritairement au niveau périphérique (Miller et al, 2003).

Par ailleurs, de rares cancers du foie ont été observés chez l'animal après inhalation ou injection d'oxydes et de diverses formes solubles de plutonium. L'induction des hépatocarcinomes semble dépendre de l'espèce animale et de la forme physico-chimique de l'actinide (NRPB Report 135, 2001).

Enfin, aucune maladie héréditaire n'a été observée dans la descendance des animaux contaminés.

- Mesure *in vivo* et *in vitro* du plutonium

Les différentes méthodes disponibles qui permettent de mesurer le plutonium présent dans l'organisme ou bien au sein d'échantillons biologiques peuvent se classer en deux catégories selon les propriétés mises en œuvre pour la quantification. D'une part, des techniques radiométriques reposent sur les modes de désintégration du plutonium et l'énergie des rayonnements émis (α , β , γ ou X). D'autre part, des techniques élémentaires sont axées sur des mesures de masses des différents isotopes du plutonium (Tableau 4).

- Les techniques radiométriques comprennent l'anthroporadiométrie ou spectrométrie X et γ *in vivo*, la spectrométrie α *in vitro*, la scintillation liquide qui est adaptée pour quantifier l'émission β de l'isotope 241, et enfin, la technique PERALS (Photon Electron Rejecting Alpha Liquid Scintillation) qui est une technique de scintillation liquide appropriée pour la mesure des émetteurs α . Les résultats obtenus par ces techniques sont exprimés en unité d'activité de l'isotope considéré.
- Les techniques élémentaires regroupent des techniques d'analyse *in vitro* telles que la spectrométrie ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry), la spectrométrie SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry) ou bien la spectrométrie TIMS (Thermo-Ionization Mass Spectrometry). Ces techniques de mesure sont relativement rapides et permettent d'obtenir des résultats en nombre d'atome par unité de masse atomique. La conversion du nombre d'atome (ou masse) en activité (Bq) dépend de la période radioactive de l'isotope.

Tableau IV : Méthodes de mesure *in vivo* et *in vitro* du plutonium

Méthodes de mesure		Echantillons	Isotopes	Limites de détection
Radiométriques	Spectrométrie X, γ <i>in vivo</i>	Poumons Squelette	^{239}Pu	3000-4000 Bq
	Spectrométrie α	Urines Fèces	^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu	$2,0 \cdot 10^{-4}$ Bq
	PERALS	Urines Fèces	qualitative	10^{-4} Bq
	Scintillation liquide	Urines Fèces	^{241}Pu	10^{-2} Bq
Élémentaires	ICP-MS	Urines	^{239}Pu , ^{240}Pu	10^{-3} Bq.L ⁻¹
	SIMS	Echantillons biologiques	^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu	0,01 pg
	TIMS	Echantillons biologiques	^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu	0,01 pg

PERALS : Photon Electron Rejecting Alpha Liquid Scintillation

ICP-MS : Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry

SIMS : Secondary Ion Mass Spectrometry

TIMS : Thermo-Ionization Mass Spectrometry

Ces techniques radiométriques et élémentaires sont complémentaires et le choix de l'utilisation d'une de ces techniques ou bien de l'association de plusieurs d'entre elles, dépendra des signatures recherchées (valeurs des rapports des différents isotopes) ainsi que de l'objectif de l'étude.

L'anthroporadiométrie ou spectrométrie *in vivo* représente une technique non invasive permettant d'estimer la quantité retenue dans l'organisme, notamment au niveau pulmonaire et osseux, après inhalation de composé de plutonium et ce, malgré sa relative faible sensibilité due à la faible énergie des émissions X et gamma associées. Dans le cadre de la surveillance des travailleurs, les autres techniques de mesures radiométriques ou élémentaires *in vitro* sont adaptées à l'analyse radiotoxicologique des urines et des fèces et permettent d'évaluer l'excrétion du plutonium en cas de contamination interne. Ces techniques d'analyses *in vitro* présentent des limites de détection suffisantes pour mettre en évidence une activité pouvant engendrer une dose supérieures aux limites réglementaires mais nécessitent une préparation radiochimique des échantillons.

- Coefficients de dose

Pour le public

Les données ci-après sont issues de la Directive Européenne 96/29/EURATOM. Elles considèrent un temps d'intégration de 50 ans pour l'adulte et jusqu'à l'âge de 70 ans pour l'enfant et des débits respiratoires moyens respectifs de $0,9 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ et $0,2 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ (Tableaux 5 et 6).

Tableau V : Coefficients de dose pour l'inhalation de particules de plutonium et l'ingestion de plutonium chez l'adulte

Adulte	Inhalation		Ingestion
Isotope	Type d'aérosol (AMAD = 1 μm)	Dose efficace (Sv.Bq ⁻¹)	Dose efficace (Sv.Bq ⁻¹)
²³⁸ Pu	F	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$2,3 \cdot 10^{-7}$
	M	$4,6 \cdot 10^{-5}$	
	S	$1,6 \cdot 10^{-5}$	
²³⁹ Pu	F	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$
	M	$5,0 \cdot 10^{-5}$	
	S	$1,6 \cdot 10^{-5}$	

AMAD : diamètre aérodynamique moyen en activité

Tableau VI : Coefficients de dose pour l'inhalation de particules de plutonium et l'ingestion de plutonium chez l'enfant

Enfant	Inhalation		Ingestion
Isotope	Type d'aérosol (AMAD = 1 μm)	Dose efficace (Sv.Bq ⁻¹)	Dose efficace (Sv.Bq ⁻¹)
²³⁸ Pu	F	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$4,0 \cdot 10^{-7}$
	M	$7,4 \cdot 10^{-5}$	
	S	$4,0 \cdot 10^{-5}$	
²³⁹ Pu	F	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$4,2 \cdot 10^{-7}$
	M	$7,7 \cdot 10^{-5}$	
	S	$3,9 \cdot 10^{-5}$	

AMAD : diamètre aérodynamique moyen en activité

f₁ : coefficient d'absorption

Pour les travailleurs

Les données sont issues de la Directive Européenne 96/29/EURATOM. Elles considèrent un temps d'intégration de 50 ans et un débit respiratoire moyen égal à $1,2 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ (Tableau 7).

Tableau VII : coefficients de dose pour l'inhalation de particules de plutonium et l'ingestion de plutonium chez le travailleur

Travailleur	Inhalation		Ingestion	
	Type d'aérosol (AMAD = 5 µm)	Dose efficace (Sv.Bq ⁻¹)	f ₁	Dose efficace (Sv.Bq ⁻¹)
²³⁸ Pu	M	3,0.10 ⁻⁵	5.10 ⁻⁴	2,3.10 ⁻⁷
	S	1,1.10 ⁻⁵	1.10 ⁻⁵	8,8.10 ⁻⁹
²³⁹ Pu	M	3,2.10 ⁻⁵	5.10 ⁻⁴	2,5.10 ⁻⁷
	S	8,3.10 ⁻⁶	1.10 ⁻⁵	9.10 ⁻⁹

AMAD : diamètre aérodynamique moyen en activité

f₁ : coefficient d'absorption

V.4. Surveillance des travailleurs exposés

Un programme de surveillance dosimétrique individuelle des travailleurs est défini par le médecin du travail afin de quantifier l'incorporation des composés de plutonium et d'évaluer les doses engagées correspondantes.

En situation normale de travail, la fréquence des examens radiotoxicologiques dépend des conditions réelles d'exposition professionnelles (procédés technologiques, types de composés de plutonium manipulés, rythme d'exposition, risque de contamination) et des techniques analytiques disponibles. En cas de risque d'incorporation par inhalation par exemple, la surveillance repose essentiellement sur des mesures *in vivo* d'anthroporadiamétrie pulmonaire ainsi que sur des analyses radiotoxicologiques *in vitro* d'excréta (urines et selles) ou de mucus nasal.

En cas d'exposition interne résultant d'une situation accidentelle, la mesure des radiocontaminants permet d'estimer l'étendue et la gravité de la contamination et fournit des informations indispensables pour guider une action thérapeutique et pour en évaluer l'efficacité. En fonction du type de contamination, un suivi des personnes concernées peut être assuré sur de longues périodes.

La CIPR dans sa publication 78 (ICRP 78, 1999) distingue le type d'examen à privilégier en fonction de la nature physico-chimique des composés de plutonium (Tableau 8). L'analyse radiotoxicologique indifféremment des urines ou des fèces peut être préconisée en cas de contamination par des composés moyennement transférables tels que les nitrates par exemple (type M). En revanche, l'analyse urinaire n'est plus adaptée en cas de contamination par des composés faiblement transférables tels que les oxydes insolubles (type S) et seule l'analyse des fèces permet alors de quantifier l'excrétion du plutonium.

Tableau VIII : examens à privilégier dans la surveillance des travailleurs en fonction de la nature physico-chimique du plutonium

Type de composé	Examen
M	Urines ou fèces
S	fèces

VI. Accidents

VI.1. Historique

En France, un peu plus d'une trentaine de travailleurs contaminés au plutonium ont été recensés entre 1965 et 2005 (selon les bases de données de l'IRSN et le bilan d'exposition aux actinides du rapport CEA R-6067). Les modes de contamination interne les plus fréquemment rencontrés en milieu professionnel sont les blessures par plaie ou par brûlure au niveau des membres supérieurs (doigts, paume de la main) et plus rarement au niveau des membres inférieurs (cuisse par exemple), l'inhalation de poussières ou d'aérosols et enfin la contamination transcutanée suite à une exposition corporelle ou bien vestimentaire.

VI.2. Réponse médicale

Le traitement en cas de contamination accidentelle par le plutonium consiste à administrer du DTPA (acide diéthylène triamine penta-acétique) sous forme de sel calcique. Cet agent chélatant forme un complexe soluble avec le plutonium et permet de réduire son transfert depuis son site d'entrée vers les organes cibles et ainsi stimuler son excrétion par voie urinaire. Différents protocoles thérapeutiques (voie et rythme d'administration, posologie) peuvent être mis en œuvre en fonction du mode de contamination et selon les pratiques des services médicaux (la dose usuelle est de 1 g de DTPA calcique par prise chez un individu de 70 kg soit environ 30 $\mu\text{mol/kg}$). Les administrations par voie intraveineuse s'effectuent sous surveillance médicale et peuvent être répétées ultérieurement en fonction des résultats d'analyses radiotoxicologiques urinaires et fécaux. La décision de poursuivre le traitement par le DTPA devra se prendre sur la base des résultats de la surveillance radiotoxicologique et seulement après concertation entre les médecins, les experts en dosimétrie et le patient. En cas de traitement chronique, le sel zincique de DTPA peut être envisagé à la place du sel calcique bien qu'il soit moins efficace. En effet, le complexe calcique de DTPA provoquerait en utilisation prolongée une élimination d'éléments essentiels tels que le cuivre et le zinc de l'organisme. Les sels de DTPA sont éliminés en moins de 48 heures principalement par voie urinaire et sont peu toxiques.

En cas de présomption de contamination par voie pulmonaire, une inhalation de DTPA sous forme de poudre micronisée à l'aide d'un turbo inhalateur peut être rapidement réalisée sur le lieu de travail et poursuivie si nécessaire au service médical par l'injection intraveineuse d'une solution de DTPA.

En cas de plaie contaminée ou de contamination par voie percutanée, un lavage par du DTPA en solution, suivi d'un traitement intraveineux et éventuellement d'une excision chirurgicale peuvent être envisagés selon les cas.

Cependant, le traitement de décontamination du plutonium par le DTPA doit être appliqué le plus rapidement possible, le DTPA n'étant efficace que sur les formes solubles de plutonium présentes au niveau du sang et les fluides extracellulaires. De plus, le DTPA n'est pas efficace sur le plutonium déposé dans ses organes cibles.

Des travaux de recherche ont été entrepris afin d'améliorer ses traitements. Ils sont axés d'une part sur la synthèse de nouveaux ligands plus efficaces et susceptibles de complexer le plutonium *in vivo*. A ce titre, le 3,4,3-LIHOPO par exemple constitue une des molécules les plus prometteuses (pour revues récentes voir Gorden et al. 2003 ou Fukuda, 2005). Des études complètes de leur toxicité doivent encore être entreprises avant d'envisager l'utilisation de ces molécules à la place du DTPA. D'autre part, de nouvelles formes pharmaceutiques telles que les liposomes ont été étudiées afin de potentialiser l'efficacité du DTPA en optimisant la distribution de la molécule vers les organes de dépôt du plutonium (Phan et al, 2006).

VI.3. Mesures sanitaires

Des normes d'interdiction de commercialisation des denrées alimentaires ont été instaurées dans l'Union Européenne depuis 1987 dans l'éventualité d'un accident futur (Règlements Euratom 3954/87 et 2218/89). Les valeurs suivantes s'appliquent à tous les isotopes du plutonium et des éléments transplutoniens à émissions alpha (Tableau 9).

Tableau IX : Teneurs maximales en plutonium autorisées dans les denrées alimentaires commercialisées dans l'Union Européenne

Denrées alimentaires prêtes à la consommation*			
Aliments pour le nourrisson	Produits laitiers	Autres denrées alimentaires	Liquides destinés à la consommation
1 Bq.kg ⁻¹	20 Bq.kg ⁻¹	80 Bq.kg ⁻¹	20 Bq.kg ⁻¹

* la Commission du Codex Alimentarius dans son Rapport ALINORM 06/29/12 de mai 2006 propose une révision des limites indicatives de 1 Bq.kg⁻¹ pour les aliments pour nourrissons et de 10 Bq.kg⁻¹ pour les autres aliments

VII. Principales références bibliographiques

Beaugelin-Seiller K., Boust D., Germain P., Roussel-Debet S. Fiche radionucléide plutonium et environnement. Fiche IRSN 01/09/04.

Bhattacharyya M.H., Breitenstein B.D., Metivier H., Muggenburg B., Stradling G.N., and Volf V. Guidebook for the treatment of accidental internal radionuclide contamination of workers. *Radiation Protection Dosimetry*, 1-49, 1992.

Federal Guidance Report n° 12, External exposure to radionuclides in air, water and soil. Oak Ridge National Laboratory, 1993.

Fukuda S. Chelating agents used for plutonium and uranium removal in radiation emergency medicine. *Current Medicinal Chemistry* 12(23), 2765-2770, 2005.

Gorden A.E., Xu J., Raymond K.N., and Durbin P. Rational design of sequestering agents for plutonium and other actinides. *Chemical Reviews*, 103, 4207-4282, 2003.

Grappin L., Berard P., Beau P., Carbone L., Castagnet X., Courtay C., Le Goff J.P., Menetrier F., Neron M.O., Piechowski J. Exposition aux actinides: bilan des injections de Ca-DTPA dans les centres CEA-COGEMA. Rapport CEA-R-6097, 2006.

International Commission on Radiological Protection. Limits for intakes of radionuclides by workers: an addendum. ICRP Publication 30, Elsevier, Oxford, 1988.

International Commission on Radiological Protection. The metabolism of plutonium and related elements. ICRP Publication 48, Elsevier, Oxford, 1986.

International Commission on Radiological Protection. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66, Elsevier, Oxford, 1994.

International Commission on Radiological Protection. Age-dependent dose for members of the public from intake of radionuclides: part 2 ingestion dose coefficients. ICRP Publication 67, Elsevier, Oxford, 1994.

International Commission on Radiological Protection. Age-dependent dose for members of the public from intake of radionuclides: part 5 compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. ICRP Publication 72, Elsevier, Oxford, 1996.

International Commission on Radiological Protection. Individual monitoring for internal exposure of workers. ICRP Publication 78, Elsevier, Oxford, 1999.

International Commission on Radiological Protection. Human alimentary tract model for radiological protection. ICRP Publication 100, Elsevier, Oxford, 2006.

Mahlum D.D. and Sikov M.R. Physicochemical state as a determinant of plutonium-238 toxicity in the rat. *Health Physics*, 17, 346-347, 1969.

Mahlum D.D. and Sikov M.R. Distribution and toxicity of monomeric and polymeric ²³⁹Pu in immature and adult rats. *Radiation Research*, 60, 75-88, 1974.

Metivier H. Plutonium. In : *Toxiques nucléaires*. Galle P. (Ed). Masson, Paris, 225-245, 1997.

Miller S.C., Lloyd R.D., Bruenger F.W., Krahenbuhl M.P., Polig E., and Romanov S.A. Comparisons of the skeletal locations of putative plutonium-induced osteosarcomas in humans with those in beagle dogs and with naturally occurring tumors in both species. *Radiation Research*, 160, 517-523, 2003.

National Council on Radiation Protection and Measurements Liver cancer risk from internally-deposited radionuclides, NCRP Report No. 135, 1-73, 2001.

Phan G., Le Gall B., Grillon G., Rouit E., Fouillit M., Benech H., Fattal E., Deverre J.R. Enhanced decorporation of plutonium by DTPA encapsulated in small PEG-coated liposomes. *Biochimie* 88(11), 1843-1849, 2006.