

Interprétation des résultats de surveillance individuelle des expositions professionnelles au dioxyde d'uranium « Proposition de dosimétrie collective »

N. BLANCHIN¹, E. DAVESNE², E. CHOJNACKI³, L. TOURI¹, M. RUFFIN⁴,
E. BLANCHARDON²

(Manuscrit reçu le 7 novembre 2012, accepté le 23 mars 2013)

RÉSUMÉ L'uranium est naturellement présent dans l'alimentation, à un niveau très variable, conduisant à des activités détectables dans les excréta, indépendamment d'une éventuelle exposition professionnelle. L'interprétation des résultats de surveillance radiotoxicologique individuelle des travailleurs exposés professionnellement au dioxyde d'uranium doit donc prendre en compte l'apport alimentaire pour établir une estimation dosimétrique. Pour ce faire, les auteurs ont testé différentes approches dans le suivi d'un travailleur et proposent une méthode originale d'interprétation des données radiotoxicologiques par comparaison des résultats obtenus dans un groupe de travailleurs exposés à ceux collectés dans une population de référence. Cette méthode a permis d'estimer une dose efficace engagée annuelle pour un groupe de travailleurs exposés au dioxyde d'uranium.

ABSTRACT Interpretation of data collected during individual monitoring of uranium dioxide exposure: collective dose assessment.

Uranium is naturally present in the diet, at highly variable levels, leading to detectable activity in excreta, independently of occupational exposure to uranium. The interpretation of bioassay data from individual routine monitoring of workers occupationally exposed to uranium dioxide must therefore take this dietary intake into account to estimate doses. In order to do this, the authors tested different approaches on a group with occupational exposure and propose an original method to compare the bioassay results of an exposed group of workers with those obtained from a control population. This method allows the determination of an annual collective committed effective dose from exposure to uranium dioxide.

Keywords: uranium / dose / dose assessment / dietary intake / collective dose / internal dosimetry

¹ CEA, Service de Santé au Travail, 13115 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex, France.

² IRSN, Laboratoire d'Evaluation de la Dose Interne, IRSN/PRP-HOM/SDI/LEDI, BP 17, 92262 Fontenay-aux-Roses Cedex, France.

³ IRSN, Laboratoire Incertitude et Modélisation des Accidents de Refroidissement, IRSN/PSN-RES/SEMIA/LIMAR, BP 3, 13115 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex, France.

⁴ CEA, Laboratoire de Biologie Médicale, 13115 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex, France.

1. Introduction

Le suivi des expositions professionnelles au dioxyde d'uranium (UO₂) repose, en complément de la surveillance au poste de travail, sur une surveillance individuelle à partir d'analyses radiotoxicologiques des excréta (urines et selles). Or, l'uranium est naturellement présent dans l'écorce terrestre. Il se retrouve dans les aliments et dans l'eau de boisson, conduisant à des activités détectables dans les excréta de sujets non exposés professionnellement. La concentration en uranium due à l'apport alimentaire varie beaucoup selon le lieu d'habitation et les habitudes alimentaires (ICRP, 1975 ; UNSCEAR, 2000). Ainsi, le résultat d'une analyse radiotoxicologique de l'uranium chez une personne exposée professionnellement à l'uranium dépend de l'apport alimentaire auquel peut s'ajouter une incorporation d'origine professionnelle.

Pour estimer la dose efficace engagée à partir d'un résultat d'analyse de l'uranium, le référentiel « Surveillance médico-professionnelle de l'exposition interne aux radionucléides en INB » (SFMT, 2011), recommande que : « en cas d'exposition professionnelle aux radioéléments naturels (uranium et thorium), l'activité liée à l'apport environnemental doit être déduite de l'activité du résultat de l'analyse. L'apport environnemental en uranium et thorium peut être estimé, soit à partir de données individuelles, soit en utilisant des valeurs moyennes par défaut. Si le laboratoire possède des valeurs moyennes de la population locale non exposée ou des valeurs individuelles antérieures à l'exposition, ces données sont utilisées à la place de valeurs par défaut ». Cependant, cette recommandation est difficile à appliquer en routine du fait de la grande variabilité de l'activité excrétée d'origine alimentaire qui conduit à des dépassements fréquents des valeurs de référence basées sur une excrétion moyenne. Inversement, un résultat inférieur à ces valeurs « repères », n'exclut pas nécessairement une incorporation d'origine professionnelle. Distinguer la contribution des apports alimentaires dans l'interprétation des résultats radiotoxicologiques n'est pas qu'une question théorique de répartition de la dose entre une origine professionnelle et une origine environnementale. En effet, selon la voie d'incorporation, la forme chimique et le type d'absorption, pour un même résultat d'analyse radiotoxicologique, l'estimation dosimétrique est très différente.

Pour le médecin du travail en charge de la surveillance individuelle de travailleurs exposés à l'uranium, la difficulté dans l'interprétation des résultats d'analyses radiotoxicologiques individuelles est de parvenir à distinguer l'activité excrétée d'origine professionnelle de celle d'origine alimentaire afin d'estimer la dose efficace engagée résultant uniquement de l'exposition professionnelle.

Plusieurs approches sont envisageables pour cela :

1. déduire du résultat d'analyse une valeur de référence déterminée chez l'individu ;
2. déduire du résultat d'analyse la valeur moyenne de l'apport alimentaire déterminée à partir d'une population témoin ;
3. comparer un groupe d'individus exposés à une population témoin afin de mettre en évidence une différence significative entre les deux populations ;
4. estimer une dose collective annuelle attribuable à chaque salarié du groupe exposé.

Ces différentes approches ont été suivies pour l'exploitation des résultats d'une population professionnellement exposée. La variabilité individuelle des résultats d'analyses a été estimée dans une population témoin. Puis une différence entre les résultats d'analyses d'une population exposée avec ceux de la population témoin a été mise en évidence. Pour finir, une méthode innovante est présentée pour estimer la dose efficace engagée annuelle reçue par l'ensemble des travailleurs exposés.

2. Description des données

2.1. Population exposée

La population exposée étudiée est constituée par les opérateurs d'une unité de fabrication de combustible UO_2 pour les réacteurs nucléaires de propulsion navale. Selon les périodes et les besoins de la production, leur nombre a varié de 15 à 30 personnes. Le procédé de fabrication comporte plusieurs étapes depuis l'introduction de la poudre d' UO_2 jusqu'au contrôle final des plaquettes obtenues par pressage et frittage dans un four à haute température. Avant l'opération de pressage, le combustible est manipulé à l'intérieur de boîtes à gants maintenues en dépression. Il est ensuite sorti des boîtes à gants pour être manipulé sous sorbonne.

Le suivi des expositions professionnelles repose à la fois sur une surveillance des postes de travail par des balises de type EDGAR (Cérat, 1994) et sur une surveillance individuelle car le risque de contamination par inhalation est significatif et continu. La surveillance individuelle de routine des expositions à l' UO_2 suit les recommandations de la norme ISO 20553 (ISO, 2006 ; SFMT 2011) par une analyse de selles semestrielle et une analyse d'urines trimestrielle. Depuis 2003, aucune contamination significative n'a été mise en évidence pour le groupe de travailleurs étudiés.

En l'absence de forte contamination, la composition isotopique de l'uranium faiblement enrichi manipulé dans cette installation ne permet le plus souvent pas de mettre en évidence l'éventuelle excrétion d'origine professionnelle. En effet, l'ajout des éventuels apports professionnels à l'apport alimentaire ne modifie pas significativement le rapport d'isotopie $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ qui varie entre 1 et 5,6 (Remy et Lemaitre, 1990).

Afin de permettre des interprétations statistiques, une base de données des résultats radiotoxicologiques de la population exposée a été constituée à partir d'analyses réalisées de 2004 à 2011. Pour cette population, les limites de détection ont été quantifiées par le laboratoire d'analyse pour chaque isotope de l'uranium. Le nombre de données recueillies sur toute la période pour la population exposée est présenté dans le tableau I.

TABLEAU I

Description des données recueillies pour la population exposée entre 2004 et 2011. LD = Limite de détection. Dans les urines, les LD varient entre 0,1 et 3 mBq pour les 3 isotopes et entre 0,1 et 8 mBq dans les selles.

Bioassay data description for the exposed population collected between 2004 and 2011. LD = Detection limit. In urine, LDs vary between 0.1 and 3 mBq for the 3 isotopes and between 0.1 and 8 mBq in faeces.

Nombre de résultats Isotope	Urines			Selles		
	total	> LD	< LD	total	> LD	< LD
^{234}U	474	209	265	274	274	0
^{238}U	474	90	384	274	274	0
^{235}U	474	0	474	274	95	179

2.2. Constitution d'une population témoin

Pour interpréter les résultats d'analyses de la population exposée en tenant compte de l'apport alimentaire en uranium, il est apparu nécessaire d'identifier une population témoin non exposée permettant de comparer les résultats d'analyses. La population choisie comme témoin est constituée des opérateurs de production d'une usine de fabrication du combustible MOX. La poudre MOX est un mélange d' UO_2 appauvri (93 % en masse) et de dioxyde de plutonium (7 % en masse) (AREVA, 2008) caractérisé par une activité de plutonium plus de 100 fois supérieure à l'activité de l'uranium. Ce groupe qui travaille sur le même centre que la population exposée, est surveillé par le même laboratoire via des analyses radiotoxicologiques semestrielles de l'uranium et du plutonium dans les urines jusqu'en 2001 puis dans les urines et dans les selles à partir de 2002 (Blanchin *et al.*, 2005).

Puisque les excréctions fécales théoriques des dioxydes d'uranium et de plutonium sont presque identiques (ICRP, 1997), si les résultats des analyses du plutonium dans les selles sont inférieurs à la limite de détection, alors une contamination par du MOX est très peu probable et l'uranium détecté dans les selles des opérateurs de la production de MOX est vraisemblablement d'origine alimentaire. De plus, lors du suivi d'inhalations avérées de poudre MOX, les résultats des analyses de l'uranium sont restés dans les valeurs habituelles même lorsque les résultats d'analyses du plutonium dans les selles étaient supérieurs à la limite de détection. Ainsi, tous les résultats d'analyses fécales de l'uranium pour lesquelles les résultats en plutonium sont inférieurs à la limite de détection ont été intégrés à la base de données.

De même, pour les analyses d'urines, une inhalation de poudre MOX se traduirait par des résultats d'analyses de niveau sensiblement égal en uranium et en plutonium. En effet, l'excrétion urinaire théorique du dioxyde d'uranium est environ 100 fois supérieure à celle du dioxyde de plutonium. Vu le rapport d'activité entre le plutonium et l'uranium dans un mélange MOX, il pourrait être conclu que l'absence de détection de plutonium entraîne que l'excrétion mesurée en uranium dans les urines est uniquement liée aux apports alimentaires. Néanmoins, par précaution, tous les résultats d'analyses urinaires de l'uranium obtenus dans un contexte d'incident avec risque d'inhalation ont été écartés des données concernant la population témoin. Ainsi, seuls les prélèvements urinaires réalisés dans le cadre de la surveillance de routine et pour lesquels les résultats de l'analyse du plutonium étaient inférieurs à la limite de détection ont été retenus pour constituer la base de données de la population témoin.

Les résultats d'analyses radiotoxicologiques sont exprimés le plus souvent en termes d'activité de chaque isotope 234, 235 et 238 de l'uranium, en mBq. Cependant, certains résultats négatifs ont été rendus sous la forme d'une activité totale d'uranium inférieure à une limite de détection (LD) de 5 mBq ou de 3 mBq par échantillon. Afin de combiner ces données aux données d'activité isotopique, les 5 mBq ont été répartis suivant une composition isotopique représentative de l'isotopie naturelle, soit 2,475 mBq pour le ^{234}U , 0,05 mBq pour le ^{235}U et 2,475 mBq pour le ^{238}U . Ce traitement a été appliqué à 82 résultats d'analyses urinaires négatifs.

Ainsi constituée, la base de données des analyses radiotoxicologiques de la population témoin contient les résultats recueillis de 2001 à 2010 pour les analyses urinaires et de 2002 à 2010 pour les analyses fécales. Le nombre de données recueillies pour la population témoin est présenté dans le tableau II.

TABLEAU II

Description des données recueillies pour la population témoin entre 2001 et 2011. LD = Limite de détection. Dans les urines, les LD varient entre 0,1 et 3 mBq pour les 3 isotopes et entre 0,1 et 9 mBq dans les selles.

Bioassay data description for the control population collected between 2001 and 2011. LD = Detection limit. In urine, LDs vary between 0.1 and 3 mBq for the 3 isotopes and between 0.1 and 9 mBq in faeces.

Nombre de résultats Isotope	Urines			Selles		
	total	> LD	< LD	total	> LD	< LD
²³⁴ U	201	42	159	842	841	1
²³⁸ U	201	24	177	842	842	0
²³⁵ U	200	1	199	842	196	646

2.3. Traitement des données

Les valeurs d'activité mesurées dans les selles ou les urines sont précisées, en majorité, par isotope (²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁵U). Lorsque le résultat brut de la mesure n'est pas statistiquement différent du bruit de fond, le résultat est dit négatif et exprimé comme « inférieur à » la LD du laboratoire, pour tenir compte de l'incertitude de mesure. Dans la pratique, le laboratoire d'analyse compare le résultat brut de la mesure avec un seuil de décision dépendant du bruit de fond et égal à la moitié de la LD. Si le résultat brut est inférieur au seuil de décision, alors le résultat est rendu comme « inférieur à la LD ». Les données qui nous intéressent comme matière de cette étude sont les résultats bruts de mesure plutôt que leur interprétation tenant compte de l'incertitude de mesure. Aussi les résultats négatifs ont été enregistrés dans les bases de données comme inférieurs au seuil de décision plutôt qu'à la LD.

3. Variabilité individuelle des résultats d'analyse

L'utilisation pour la surveillance de l'exposition professionnelle d'une valeur de référence pour l'excrétion due à l'apport alimentaire, demande une valeur suffisamment précise et fiable pour éviter de sous-estimer ou de surestimer de façon significative les incorporations d'origine professionnelle.

En pratique, cette valeur de référence peut être :

- une moyenne de l'activité excrétée par des personnes non exposées ;
- ou déterminée chez un individu à partir d'une mesure réalisée avant toute exposition professionnelle.

Utiliser comme valeur de référence l'activité excrétée moyenne de la population témoin nécessiterait que la variabilité de l'apport alimentaire pour l'ensemble de

population témoin soit faible, indiquant une variabilité limitée des apports alimentaires dans la population et par conséquent pour chaque individu de la population. Plus cette variabilité est faible, moins le fait de retirer une valeur moyenne de l'excrétion induirait de biais dans l'interprétation des résultats en surestimant ou sous-estimant la contamination d'origine professionnelle. Cette variabilité a été estimée en calculant l'écart-type de l'ensemble des résultats d'analyses de la population témoin. La variabilité des excrétions fécales et urinaires est très importante dans la population témoin : 52 mBq pour le ^{234}U , 27 mBq pour le ^{238}U et 4,6 mBq de ^{235}U dans les selles, 2,7 mBq de ^{234}U et 3,7 mBq de ^{238}U dans les urines. Pour les analyses urinaires en ^{235}U , la totalité des résultats est négative rendant toute interprétation impossible. Ces valeurs sont à comparer avec les excrétions moyennes de 41 mBq pour le ^{234}U , 28 mBq pour le ^{238}U et 2,8 mBq de ^{235}U dans les selles, et 1,74 mBq pour le ^{234}U et 1,99 mBq pour le ^{238}U dans les urines. Une telle variabilité de l'activité excrétée par la population témoin rendrait très peu fiable l'utilisation d'une valeur de référence de l'excrétion égale à la valeur moyenne des activités excrétées de la population témoin : soustraire la valeur moyenne pourrait amener à conclure une absence de contamination ou à une contamination surestimée par un facteur 2 par exemple en retirant 28 mBq d'un résultat d'analyse pour le ^{238}U dans les selles sachant que la variabilité de cette valeur est de 27 mBq.

L'utilisation de la deuxième option requiert que la variabilité de l'excrétion d'un individu donné soit faible. Pour vérifier cela, l'écart-type des résultats d'analyses disponibles a été calculé pour chaque personne de la population témoin chez laquelle au moins deux prélèvements d'urines ou de selles ont été analysés. Cet écart-type individuel représente la variabilité intra-individuelle de l'activité excrétée d'origine alimentaire.

TABLEAU III
Nombre d'écart-types individuels de l'activité excrétée déterminés pour la population témoin.
Number of individual standard deviations of bioassay results calculated for the control population.

Isotope	Urines	Selles
^{234}U	9	108
^{238}U	6	108
^{235}U	0	48

Le nombre d'écart-types individuels estimés pour la population témoin est présenté dans le tableau III. Les valeurs des écart-types individuels ont été regroupées sous la forme d'une distribution de probabilité cumulée empirique

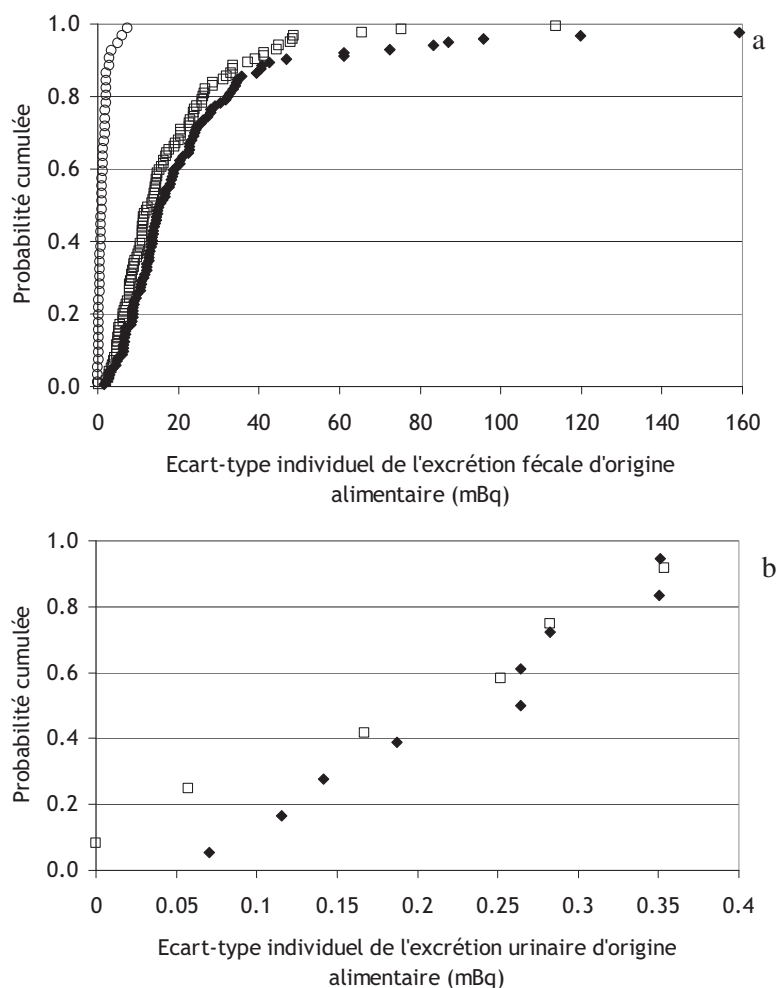


Figure 1 – *Probabilité cumulée empirique de l'écart-type individuel de l'excrétion fécale (a) et urinaire (b) d'origine alimentaire à partir des données de la population témoin pour le ^{234}U (◆), le ^{238}U (□) et le ^{235}U (○).*

Empirical cumulative distribution function of individual standard deviation of faecal (a) and urinary (b) excretion of dietary intake of uranium from the bioassay data of the control population for ^{234}U (◆), ^{238}U (□) and ^{235}U (○).

(Fig. 1). Cette représentation permet d'identifier facilement l'écart-type individuel médian ainsi que les valeurs extrêmes de cet écart-type et les percentiles associés aux valeurs moyennes. Ces paramètres sont regroupés dans le tableau IV.

TABLEAU IV
Description des écart-types individuels calculés pour la population témoin.
Description of the individual standard deviations calculated for the control population.

Isotope	Ecart-type individuel de l'excrétion urinaire (mBq)				Percentile correspondant à la moyenne
	minimum	maximum	médiane	moyenne	
²³⁴ U	0,07	0,35	0,23	0,22	50 ^e
²³⁸ U	0,06	0,35	0,21	0,21	50 ^e
²³⁵ U	–	–	–	–	–

Isotope	Ecart-type individuel de l'excrétion fécale (mBq)				Percentile correspondant à la moyenne
	minimum	maximum	médiane	moyenne	
²³⁴ U	1,6	530	15,4	29,1	77 ^e
²³⁸ U	0,35	114	13,0	18,0	65 ^e
²³⁵ U	0	7,4	1,0	1,4	65 ^e

L'écart-type individuel moyen obtenu pour les résultats d'analyses fécales du ²³⁴U est de 30 mBq pour les selles, à comparer avec l'excrétion fécale alimentaire moyenne de 40 mBq. Cette variabilité, déjà importante en moyenne, atteint 530 mBq chez un des travailleurs témoins et 10 % des personnes de la population témoin présentent un écart-type individuel supérieur à 50 mBq. Les écarts-types relatifs individuels varient entre 16 et 76 % pour les urines et 6 et 217 % pour les selles. Des résultats similaires sont obtenus pour les autres isotopes.

Ainsi, la variabilité importante de l'excrétion de l'uranium alimentaire observée chez une même personne de la population témoin rend difficile l'estimation d'une valeur de référence individuelle qu'il conviendrait de déduire des résultats d'analyses des travailleurs exposés : au vu des variations très importantes de l'excrétion, comment déterminer la valeur moyenne de l'excrétion pour cette personne, comment savoir si ce résultat d'analyse élevé est dû à une fluctuation de l'apport alimentaire de cette personne ou d'une contamination ? Pour avoir une bonne estimation de la variabilité de l'apport alimentaire et de sa valeur, il faudrait donc de très nombreux résultats d'analyses hors exposition professionnelle pour chaque personne et faire un test de la même manière que le seuil de décision et la limite de détection d'une mesure est déduite de l'étude de la variabilité du bruit de fond pour cette mesure.

Les risques de sous-estimations ou de surestimations sont trop importants pour que retirer une valeur de référence des résultats d'analyses soit une méthode satisfaisante pour déterminer si une contamination a eu lieu. En retirant une valeur

de référence, il peut être conclu pour un résultat d'analyse de la population témoin particulièrement élevée, une contamination très importante et pour un résultat faible, une absence de contamination même si elle a eu lieu pour une personne un jour où son apport alimentaire était faible. Les deux approches testées ne sont pas applicables en pratique.

L'utilisation individuelle des résultats d'analyses radiotoxicologiques ne permet pas d'estimer de manière fiable si une contamination a eu lieu de la même façon qu'il est difficile d'interpréter un résultat de mesure pour déduire si une activité est présente ou si le résultat provient du bruit de fond. Pour répondre à cette question, les métrologistes utilisent un seuil de décision qui correspond au 95^e percentile des mesures de bruit de fond. Ainsi, le risque de conclure à tort à la présence d'une contamination est de 5 %. Cependant, au vu de la dispersion des données, ce seuil de décision correspondant aux 95^e percentile des données observées pour la population témoin correspond aux percentiles 90 et supérieurs pour la population exposée : cette démarche conduit à conclure directement à une non-contamination des travailleurs exposés. Pour s'assurer de la véracité de cette conclusion, il a été décidé de traiter les résultats d'analyses non individuellement mais de manière globale en regroupant tous les résultats d'analyses obtenus pour chaque population. La première étape de cette analyse est de réaliser une comparaison des populations pour mettre en évidence une éventuelle différence entre les résultats d'analyses des deux populations révélant une contamination de la population exposée.

4. Comparaison des populations

Dans un premier temps, le pourcentage des résultats d'analyses urinaires positifs a été calculé pour chacune des deux populations « témoin » et « exposée ». Il est de 21 % pour la population témoin et de 44 % pour la population exposée. Cependant, cette méthode ne permet pas de déterminer si cette différence, bien qu'importante, est significative.

Afin de déterminer s'il existe une différence statistiquement significative entre les populations « témoin » et « exposée », les données suivantes de chaque population ont été comparées :

- les résultats d'analyses fécales par isotopes ^{234}U , ^{238}U et ^{235}U ;
- les résultats d'analyses urinaires par isotopes ^{234}U et ^{238}U ;
- les rapports isotopiques $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ de l'ensemble des données urinaires et fécales.

Dans cette comparaison, seuls les résultats positifs sont exploités. Un seul résultat positif ayant été obtenu pour le ^{235}U dans les urines, aucune information n'a pu être tirée de l'analyse urinaire pour cet isotope.

4.1. Méthodologie pour la comparaison des populations

À chaque type de données comparées correspondent différentes valeurs observées pour chaque population. Cet ensemble de valeurs observées présente une certaine variabilité résultant d'une distribution inconnue et théorique modélisant cette variabilité et sa moyenne. La comparaison des populations a pour objectif de confirmer ou de rejeter l'hypothèse : « la distribution de la population exposée est identique à celle de la population témoin ».

Cette hypothèse est soumise au test statistique de Wilcoxon, comme réalisé par Karpas *et al.* (2005) pour mettre en évidence des différences d'absorption intestinale de l'uranium en fonction de l'âge, du sexe et de l'apport alimentaire des individus. Les valeurs observées pour les deux populations sont rassemblées puis ordonnées par valeurs croissantes. Un rang est associé à chaque valeur observée : 1 pour la plus petite valeur, 2 pour la suivante... jusqu'à la plus grande valeur qui reçoit le rang égal au nombre total de valeurs observées. La statistique de Wilcoxon est la valeur de la somme des rangs des valeurs observées de la population exposée. Suivant une distribution théorique déterminée à partir du nombre de mesures des deux populations, la probabilité d'obtenir une somme des rangs supérieure ou égale à la valeur observée pour la population exposée peut être déterminée sous l'hypothèse que les distributions des deux populations sont identiques. Le test de Wilcoxon conduit alors à rejeter cette hypothèse si cette probabilité est trop faible, par exemple inférieure à 5 ou 10 %.

4.2. Comparaison des résultats d'analyses urinaires et fécales

Le tableau V présente la probabilité de la valeur de la somme des rangs pour la population exposée sous l'hypothèse que sa distribution est identique à celle de la population témoin : les valeurs des exposés et des témoins seraient tirées aléatoirement de la même population globale. Pour les analyses fécales, la probabilité d'obtenir des valeurs supérieures ou égales aux valeurs observées de la somme des rangs pour la population exposée en supposant que sa distribution est identique à celle de la population témoin est très inférieure à 1 % pour le ^{234}U et proche de 8 % pour le ^{238}U . Pour les autres analyses, aucune différence significative n'a pu être mise en évidence entre les résultats d'analyses de la population exposée et de la population témoin. Le faible nombre de résultats positifs pour ces analyses peut expliquer cette observation.

TABLEAU V

Probabilités calculées avec le test de Wilcoxon que la valeur de la somme des rangs soit supérieure ou égale à la valeur de la somme des rangs observée pour la population exposée suivant l'hypothèse que sa distribution est identique à celle de la population témoin.

Probabilities calculated with the Wilcoxon test that the sum of the ranks is higher than or equal to the observed value of the rank sums for the exposed population assuming that its distribution is the same as the distribution of the control population.

Isotope	Analyse	Probabilité
²³⁴ U	Selles	9×10^{-7}
	Urines	3×10^{-1}
²³⁸ U	Selles	8×10^{-2}
	Urines	4×10^{-1}
²³⁵ U	Selles	3×10^{-1}

La distribution significativement différente des résultats des mesures fécales du ²³⁴U entre populations exposée et témoin, et dans une moindre mesure celle du ²³⁸U permet d'avancer l'hypothèse d'une contamination d'origine professionnelle des travailleurs fabriquant les plaques de combustible. En complément, les rapports isotopiques des deux populations ont été comparés par le test de Wilcoxon. La probabilité d'obtenir des valeurs supérieures ou égales aux valeurs observées de la somme des rangs pour la population exposée sous l'hypothèse que sa distribution est identique à celle de la population témoin est trouvée égale à 0 : les rapports isotopiques calculés pour la population exposée n'ont donc pas la même distribution que ceux de la population témoin. Cette différence des rapports isotopiques renforce l'hypothèse d'une contamination de la population exposée par de l'uranium d'origine professionnelle.

4.3. Discussion

Les comparaisons des résultats d'analyses radiotoxicologiques et des rapports isotopiques des populations témoin et exposée semblent indiquer une différence significative d'exposition à l'uranium entre ces deux populations. Ainsi, l'hypothèse d'une contamination du groupe exposé par de l'uranium d'origine professionnelle peut être retenue dans le contexte de l'étude.

Puisque les résultats statistiques de Wilcoxon indiquent une différence entre les deux populations, il a été décidé d'exploiter l'ensemble des résultats d'analyses radiotoxicologiques pour estimer l'ampleur de la contamination. Une évaluation dosimétrique individuelle ne paraissant pas possible, une nouvelle approche a été développée pour évaluer la dose efficace correspondant à une estimation de l'incorporation moyenne à partir de l'ensemble des résultats d'analyses de la population exposée.

5. Dosimétrie collective

5.1. Modèle biocinétique

Pour estimer la dose reçue par les travailleurs exposés à l'uranium, le scénario de contamination peut être une inhalation ponctuelle ou chronique d' UO_2 . La surveillance des travailleurs est mise en œuvre par des analyses urinaires trimestrielles et des analyses fécales biennuelles. En raison du caractère continu des activités de fabrication du combustible UO_2 et de l'absence d'événements significatifs associés à la surveillance d'ambiance, une contamination chronique semble plus réaliste. Cependant, l'hypothèse d'une contamination ponctuelle permet une estimation de dose majorante et rend compte de l'influence de l'hypothèse sur les dates d'exposition. Deux scénarios d'exposition ont été envisagés : d'une part une contamination ponctuelle au milieu de l'intervalle de surveillance des analyses urinaires (ICRP, 1997), soit 45 jours avant la mesure, d'autre part une contamination chronique constante durant l'intervalle de surveillance de 90 jours. Les estimations dosimétriques ont donc été réalisées avec les deux hypothèses.

Le modèle biocinétique utilisé est composé des modèles systémique de l'uranium (ICRP, 1995), gastro-intestinal (ICRP, 1979) et respiratoire (ICRP, 1994) de la Commission internationale de protection radiologique (CIPR).

Les coefficients de dose et les fonctions d'excrétion résultant de ces modèles ont été calculés à l'aide du logiciel IMBA (Birchall *et al.*, 2007) avec des valeurs de référence pour la taille des particules de l'aérosol (diamètre aérodynamique médian en activité, $\text{DAMA} = 5 \mu\text{m}$; écart-type géométrique, $\sigma_g \text{DAMA} = 2,5$ (ICRP, 1994)). Une revue de la littérature a permis de déterminer des paramètres d'absorption médians pour l' UO_2 (Davesne *et al.*, en préparation) :

- fraction de l'activité déposée rapidement dissoute : $f_R = 2,2 \times 10^{-2}$;
- vitesse de dissolution rapide : $s_R = 1 \text{ j}^{-1}$;
- vitesse de dissolution lente : $s_S = 5,9 \times 10^{-4} \text{ j}^{-1}$;
- fraction de l'activité ingérée absorbée dans l'intestin : $f_A = 4,4 \times 10^{-4}$.

5.2. Estimation de l'incorporation moyenne

L'estimation de l'incorporation moyenne est réalisée en supposant que tous les travailleurs sont exposés de la même manière. En conséquence, l'ensemble des analyses radiotoxicologiques positives et négatives réalisées durant une année pour l'ensemble des travailleurs est utilisé afin d'estimer l'incorporation reçue durant cette année par le groupe de travailleurs exposés.

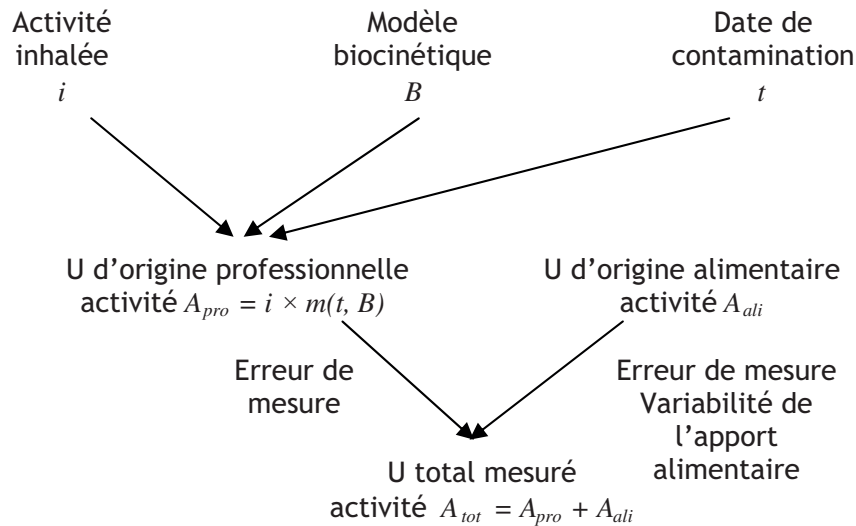


Figure 2 – Relation entre l'activité inhalée et les résultats d'analyses radiotoxicologiques.
Relationship between inhaled activity and bioassay results.

La méthode développée pour estimer l'incorporation moyenne repose sur l'évaluation de l'activité inhalée la plus vraisemblable au vu des résultats d'analyses radiotoxicologiques. L'activité inhalée i est reliée à l'ensemble A_{tot} des activités totales d'uranium (d'origine professionnelle et alimentaire) A_{tot}^j mesurées dans les urines et les selles pour chaque individu j et chaque isotope (Fig. 2). Pour le modèle biocinétique B et la date de contamination t indiqués au paragraphe 5.1, l'activité d'uranium d'origine professionnelle présente dans les excréta A_{pro} est reliée à l'activité inhalée i par :

$$A_{pro} = i \times m(B, t).$$

Cependant, l'activité en uranium mesurée dans les excréta A_{tot} est la somme des activités des uraniums d'origine alimentaire A_{ali} et d'origine professionnelle A_{pro} . Or, A_{ali} et A_{pro} sont sujettes à des variations interindividuelles et aux erreurs de mesure. Pour estimer i , il est nécessaire de prendre en compte ces variabilités.

En accord avec les recommandations du guide pratique résultant du contrat européen IDEAS (Doerfel *et al.*, 2006), l'incertitude sur l'analyse des excréments urinaire et fécale A_{pro} est supposée de type lognormale avec un écart-type géométrique de 1,6 pour les analyses urinaires et de 3 pour les analyses fécales.

La variabilité de l'activité d'origine alimentaire A_{ali} a été estimée à partir des résultats d'analyses recueillies chez la population témoin. Les résultats d'analyses positifs et négatifs observés dans les urines et les selles pour les 3 isotopes ont été modélisés par des distributions de probabilités lognormales de paramètres μ et σ . μ et σ correspondant à la moyenne et l'écart-type de la distribution normale des logarithmes de A_{ali} , ou μ_g et σ_g avec $\mu = \ln(\mu_g)$ et $\sigma = \ln(\sigma_g)$ ayant la même unité que A_{ali} :

$$P(A_{ali}) = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi} A_{ali}} e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(A_{ali}) - \mu}{\sigma} \right)^2} \quad \text{ou}$$

$$P(A_{ali}) = \frac{1}{\ln(\sigma_g) \sqrt{2\pi} A_{ali}} e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(A_{ali}) - \ln(\mu_g)}{\ln(\sigma_g)} \right)^2}.$$

Les paramètres des distributions μ et σ ont été ajustés aux données observées par une méthode de maximum de vraisemblance, avec comme vraisemblance le produit des $P(A_{ali})$ pour chaque valeur de A_{ali} (Saporta, 2011) et sont présentés dans le tableau VI. Ces distributions étant construites à partir de données mesurées, elles représentent à la fois la variabilité intra-individuelle et interindividuelle de l'apport alimentaire et de l'excrétion biologique, et les erreurs de mesure.

TABLEAU VI
Paramètres des distributions lognormales modélisant la variabilité de l'activité excrétée d'uranium d'origine alimentaire. μ et σ correspondent à la moyenne et l'écart-type de la distribution normale des logarithmes de A_{ali} , avec $\mu = \ln(\mu_g)$ et $\sigma = \ln(\sigma_g)$.
Lognormal distribution parameters modelling the variability of excreted uranium from dietary intake. μ and σ are the mean and the standard deviation of the normal distribution of $\ln(A_{ali})$, with $\mu = \ln(\mu_g)$ and $\sigma = \ln(\sigma_g)$.

		μ	σ	μ_g (Bq)	σ_g (Bq)
Urines	^{234}U	-8,79	1,35	$1,5 \times 10^{-4}$	3,9
	^{238}U	-9,84	1,62	$5,3 \times 10^{-5}$	5,1
	^{235}U	Un seul résultat positif			
Selles	^{234}U	-3,58	0,73	$2,8 \times 10^{-2}$	2,1
	^{238}U	-3,82	0,72	$2,2 \times 10^{-2}$	2,1
	^{235}U	-8,73	1,93	$1,6 \times 10^{-4}$	6,9

Pour juger visuellement de la validité de la modélisation des données par les distributions lognormales ainsi obtenues, les données brutes ont été représentées sous la forme de distributions cumulées. Les distributions des données brutes sont

dites « empiriques » par opposition aux distributions lognormales, dites paramétriques, qui sont le résultat d'une modélisation. Pour tenir compte des résultats négatifs, les distributions empiriques ont été construites en utilisant la méthode de Kaplan-Meier (Klein et Moeschberger, 2005). Les distributions paramétriques et empiriques sont présentées sur la figure 3.

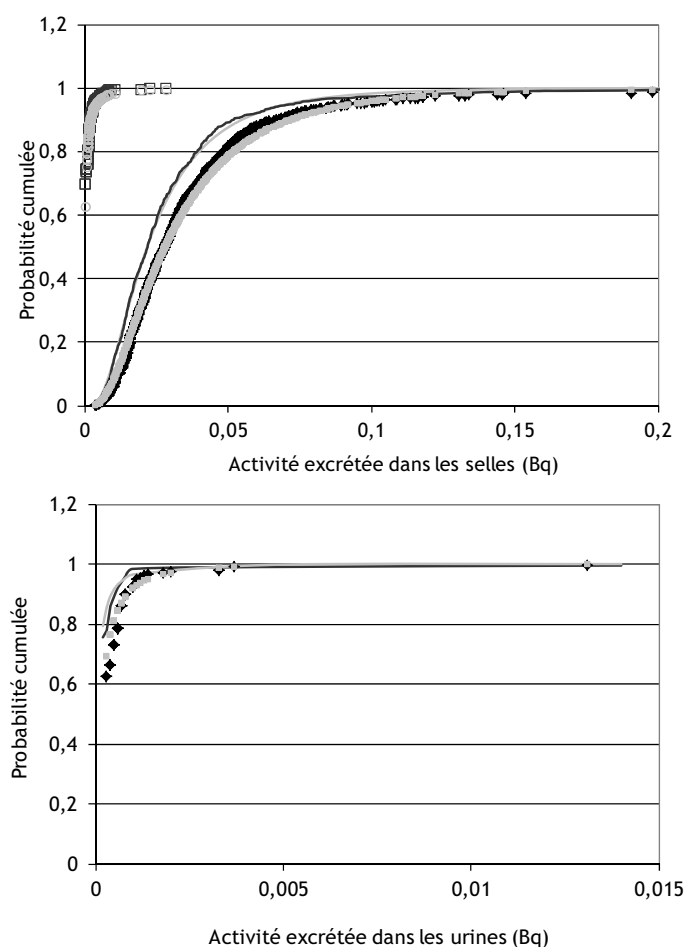


Figure 3 – Distributions de probabilités cumulées lognormales (grise) et empiriques (noire) des résultats d'analyses urinaires et fécales de la population témoin pour le ^{234}U (symboles pleins), le ^{238}U (lignes), ^{235}U (symboles vides).

Lognormal (grey) and empirical (black) cumulative distribution function of urinary and faecal bioassay data for the control population for ^{234}U (closed symbols), ^{238}U (lines) and ^{235}U (open symbols).

La lecture graphique des distributions cumulées montre que l'adéquation du modèle statistique aux données observées est très satisfaisante pour les données fécales correspondantes aux isotopes ^{234}U et ^{238}U , et raisonnablement satisfaisante pour les résultats d'analyses urinaires des isotopes ^{234}U et ^{238}U et des analyses fécales de l'isotope ^{235}U . L'écart entre l'estimation paramétrique de $P(A_{ali})$ (loi lognormale) et celle empirique (Kaplan-Meier) permet de vérifier que la modélisation des données par les lois lognormales n'introduit pas de biais dans l'évaluation de l'incorporation moyenne par rapport à l'utilisation des données empiriques.

L'activité inhalée la plus probable au vu des résultats d'analyses recueillis par isotope chez tous les travailleurs exposés durant une année, est estimée par une méthode de maximum de vraisemblance en prenant en compte la variabilité de l'excrétion de l'uranium d'origine alimentaire et professionnelle ainsi que les erreurs de mesure. La vraisemblance est la probabilité d'observer les mesures en connaissant les paramètres biocinétiques, l'incorporation et toutes les sources d'incertitudes précitées. Cette activité inhalée la plus probable est multipliée par le coefficient de dose correspondant pour estimer la dose efficace engagée sur 50 ans suite à l'incorporation d'un isotope pendant un trimestre. La dose efficace engagée moyenne résultant de l'exposition annuelle à l'uranium est obtenue en sommant les doses correspondant à chaque isotope puis en multipliant cette somme par quatre trimestres.

5.3. Résultats

En appliquant la méthode présentée ci-dessus, les doses moyennes annuelles de la population des travailleurs exposés ont été évaluées et sont présentées dans le tableau VII. Toutes les doses efficaces estimées sont inférieures à 1 mSv, niveau d'enregistrement des doses (SFMT, 2011) : inférieures à 0,5 mSv en supposant une contamination ponctuelle et inférieures à 0,2 mSv en supposant une contamination chronique. Les faibles valeurs d'activité inhalée (moins de 30 Bq par an) expliquent le caractère non discriminant des analyses radiotoxicologiques individuelles pour l'identification d'une faible contamination par rapport à l'apport alimentaire : l'excrétion théorique d'origine professionnelle à 45 jours pour le ^{234}U est de 3,8 mBq dans les selles et de 0,09 mBq dans les urines à comparer avec la valeur moyenne de l'excrétion due à l'apport alimentaire de 41 mBq dans les selles et 1,74 mBq dans les urines. L'approche collective intégrant tous les résultats d'analyses de la population exposée permet néanmoins d'estimer ces faibles activités.

La dose moyenne la plus élevée a été estimée pour l'année 2004 : 0,46 mSv en supposant une contamination ponctuelle et 0,15 mSv en supposant une

TABLEAU VII
Doses efficaces annuelles estimées sur la base des analyses radiotoxicologiques de l'année, pour les travailleurs de la population exposée, suivant l'hypothèse retenue sur la fréquence de contamination.

Annual effective doses assessed from the bioassay data of the whole group of exposed workers collected during the year, depending on the time pattern of intake.

Année	Dose efficace engagée sur 50 ans (mSv)	
	contamination ponctuelle	contamination chronique
2004	0,46	0,15
2005	0,21	0,07
2006	0,26	0,08
2007	0,32	0,11
2008	0,33	0,13
2009	0,25	0,08
2010	0,25	0,08
2011	0,39	0,12

contamination chronique. C'est durant l'année 2005 que les doses les plus faibles ont été obtenues : 0,21 mSv en supposant une contamination ponctuelle et 0,07 mSv en supposant une contamination chronique. La dose collective peut être estimée à partir des doses moyennes en les multipliant par le nombre de travailleurs présents sur l'installation au cours de l'année.

Il est à noter que si les deux hypothèses (contamination chronique ou contamination ponctuelle) ont été examinées, compte tenu de l'absence de détection de contamination notamment atmosphérique par les moyens de radioprotection pendant la période d'étude, les doses moyennes estimées sur la population exposée sont beaucoup plus vraisemblablement des « microcontaminations » répétées assimilables au modèle chronique qu'à des événements ponctuels. Soulignons, enfin, que le niveau moyen des doses estimées, inférieur au niveau d'enregistrement (1 mSv) est également en cohérence avec l'absence d'évènement de contamination décelé par la radioprotection.

6. Conclusion

Cette étude avait pour objectif l'interprétation de données radiotoxicologiques obtenues dans le cadre d'une surveillance de routine d'une exposition au dioxyde d'uranium. Une méthode générale a été construite à partir de l'étude de données réelles de surveillance en comparant des données radiotoxicologiques d'une population exposée avec celles d'une population témoin. Ces données ont été

recueillies de 2002 à 2011 pour la population témoin et de 2004 à 2011 pour la population exposée.

Les données radiotoxicologiques de la population témoin ont été utilisées pour estimer la variabilité de l'excrétion de l'uranium d'origine alimentaire pour une population non contaminée professionnellement. Il a été observé que la variabilité globale de la population est importante de même que la variabilité pour une seule personne. Ceci rend inappropriée l'utilisation d'une valeur de référence pour l'activité excrétée d'origine alimentaire, que celle-ci soit déterminée pour un individu ou à partir de la population témoin dans son ensemble, car le risque de sous-estimation d'une exposition professionnelle serait trop important.

Puisque la grande variabilité de l'activité d'uranium d'origine alimentaire mesurée dans les excréta ne permet pas d'estimer une dose individuelle fiable, une nouvelle approche a été développée pour estimer la dose moyenne annuelle reçue par les travailleurs exposés.

Dans un premier temps, les données radiotoxicologiques des deux populations ont été comparées par un test de Wilcoxon. Une différence significative a été mise en évidence, suggérant une contamination sur la période 2004-2011 des travailleurs exposés par de l'uranium d'origine professionnelle. Dans un second temps, une méthode, intégrant les différentes sources d'incertitude et de variabilité dans les mesures, appliquée sur l'ensemble des résultats d'analyses radiotoxicologiques obtenus pendant une année, a permis d'estimer l'incorporation annuelle moyenne la plus vraisemblable pour l'ensemble des travailleurs, supposés également exposés.

Dans le cadre de la population choisie pour cette étude, la méthode permet de montrer que les doses efficaces individuelles moyennes annuelles engagées sur 50 ans restent, chaque année, inférieures à 0,5 mSv. Cette méthode est facilement intégrable dans une feuille de calcul Excel® et peut être étendue à d'autres postes de travail à condition que les travailleurs puissent être comparés à une population témoin pertinente.

RÉFÉRENCES

- AREVA – Direction de la communication (2008) *Tout sur l'énergie nucléaire*, AREVACOM, Paris.
- Birchall A., Puncher M., Marsh J.W., Davis K., Bailey M.R., Jarvis N.S., Peach A.D., Dorrian M.D., James A.C. (2007) IMBA Professional Plus: a flexible approach to internal dosimetry, *Radiation protection dosimetry* **125**, 194-197.
- Blanchin N., Fottorino R., Grappin L., Guillermin A.M., Lafon Ph., Miele A., Ruffin M. (2005) Surveillance systématique des expositions aux transuraniens par les analyses radiotoxicologiques des selles, *Radioprotection* **40** (2), 231-243.

- Davesne Cérat D. (1994) EDGAR, retour d'expérience Rayonnements Ionisants, *Techniques de Mesures et de Protection* **4**, 11-33.
- Doerfel H., Andrási A., Bailey M., Berkovski V., Blanchardon E., Castellani C.-M., Hurtgen C., Le Guen B., Malatova I., Marsh J., Stather J. (2006) General guidelines for the assessment of internal dose from monitoring data (project IDEAS – EU contract n° FIKR-CT2001-00160), Report FZKA 7243.
- ICRP Publication 23 (1975) Report of the task group on reference man, Pergamon Press, Oxford.
- ICRP Publication 30 (1979) Limits for intake of radionuclides by workers, Part 1, *Ann. ICRP* **2** (3-4).
- ICRP Publication 66 (1994) Human respiratory tract model for radiological protection, *Ann. ICRP* **24** (1-3).
- ICRP Publication 69 (1995) Age-dependent doses to member of the public from intake of radionuclides: Part 3 Ingestion dose coefficients, *Ann. ICRP* **25** (1).
- ICRP Publication 78 (1997) Individual monitoring for internal exposure of workers, *Ann. ICRP* **27** (3-4).
- ISO (2006) Radiation protection - Monitoring of workers occupationally exposed to a risk of internal contamination with radioactive material, ISO 20553:2006(E).
- Karpas Z., Paz-Tal O., Lorber A., Salonen L., Komulainen H., Auvinen A., Saha H., Kurtio P. (2005) Urine, hair, and nails as indicators for ingestion of uranium in drinking water, *Health Phys.* **88**, 229-242.
- Klein J.P., Moeschberger M.L. (2005) *Survival Analysis: Techniques for Censored and Truncated Data*, *Statistics for Biology and Health*, 2nd edition, Springer, New York.
- Remy M.L., Lemaitre N. (1990) Eaux minérales et radioactivité, *Hydrogeol. Inz. Geol.* **4**, 267–278.
- Saporta G. (2011) Probabilités, analyse des données et statistique. 3^e édition révisée (Paris: Editions TECHNIP).
- SFMT (2011) Recommandations de Bonne pratique, Surveillance médico-professionnelle de l'exposition interne aux radionucléides en installations nucléaires de base, labélisé par la Haute Autorité de Santé (www.chu-rouen.fr/sfmt/pages/Recommandations.php).
- UNSCEAR (2000) Sources and Effects of ionizing radiation, Report of the general Assembly with Scientific Annexes, Volume I: Sources, United Nations: New York.