EVALUATION DE LA DOSE A L'HOMME RESULTANT DE LA PRESENCE DE RADIONUCLIDES NATURELS DANS LES ENGRAIS PHOSPHATES D'ORIGINE MINERALE.

R. Kirchmann¹, R. Boulenger², J. Colard³ et A. Lafontaine⁴

¹Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire, Mol, Belgique

²Contrôle-Radioprotection, ASBL, Bruxelles, Belgique

³Institut d'Hygiène et d'Epidémiologie, Bruxelles, Belgique

1. INTRODUCTION

Le phosphore est un élément majeur indispensable à la croissance des végétaux aussi l'Agriculture fait-elle appel aux engrais phosphatés sous diverses formes, depuis le début du siècle.

L'application d'engrais phosphatés d'origine minérale est la plus répandue en Belgique, environ 140.000 tonnes de P_2O_5 en 1975, à titre de comparaison, les scories basiques ont été utilisées à concurrence d'environ 75.000 tonnes P_2O_5 /an.

Il est bien connu que les phosphates minéraux contiennent de l'uranium et ses descendants dont le ^{226}Ra . En raison de cet emploi généralisé des engrais phosphatés d'origine minérale, il nous a paru intéressant de rechercher l'incidence de cet apport sur la contamination des produits agricoles et d'évaluer la contribution de ces radionuclides à la dose d'irradiation interne de l'homme.

2. METHODE EXPERIMENTALE

Une quarantaine d'échantillons de phosphates naturels et d'engrais phosphatés de diverses origines, fournis par les services du Ministère de l'Agriculture, ainsi qu'une douzaine d'échantillons de scories basiques provenant des principaux producteurs belges et luxembourgeois ont été analysés afin d'en connaître les teneurs en ^{226}Ra et en U naturel.

2.1. Techniques de mesures

La mesure du ^{226}Ra de ces échantillons a été réalisée par spectrométrie gamma. Afin d'éviter un déséquilibre au niveau du radon-222 qui est gazeux, l'échantillon à mesurer est placé dans un flacon étanche adapté au cristal NaI(Tl) utilisé, en outre on complète le remplissage par du charbon actif.

La mesure de l'uranium est effectuée selon les méthodes d'analyse par activation: des échantillons de 2 g environ sont irradiés pendant 15 min. dans un flux de 1.10^{14} n.cm⁻².s⁻¹. La fission de ^{235}U fournit de nombreux radioéléments à partir desquels peut s'effectuer le dosage. On a choisi le ^{140}Ba - ^{140}La , relativement facile à mesurer par spectrométrie γ grâce au pic de haute énergie du ^{140}La (1,6 MeV - 95%). La présence dans les échantillons de ^{139}La qui forme du ^{140}La au cours de l'activation ainsi que les fortes activités de ^{47}Ca et ^{46}Sc obligent à effectuer une séparation chimique en vue d'isoler le ^{140}Ba . Un délai de deux à trois jours entre la séparation chimique et la mesure permet d'obtenir en équilibre partiel du ^{140}La sur lequel on effectue la mesure au moyen d'un cristal NaI (Tl) 3" x 3".

¹ces mesures ont été effectuées en 1966.

2.2. Résultats

Les valeurs limites et moyennes résultant de l'analyse des divers types d'engrais phosphatés sont indiqués dans le tableau 1. A noter que les phosphates naturels analysés ont des teneurs assez constantes à l'exception cependant des phosphates provenant de Kola dont les teneurs sont beaucoup plus faibles. Les produits préparés ont des teneurs variables en radioéléments naturels mais la plupart des "super" accusent des teneurs en ^{226}Ra atteignant encore 75% de celles des phosphates bruts; les teneurs en U naturel des "super" variant entre 40 et 80% de celles des phosphates bruts.

Engrais	P_2O_5 (%)	^{226}Ra			^{238}U		
		pCi.g^{-1}			ppm		
		min.	max.	moyenne	min.	max.	moyenne
Phosphate naturel	33	<2,2	44	36,5	4,8	190	108,4
Super simple	18	22	27	25,2	44,9	86,4	62,7
Super double	40	18	19	18,7	60,7	149	110
Bicalcique	40	<3,7	2,3	2,7	24,3	45,8	36,0
Scories	15	0,2	0,6	0,52	0,6	4,1	1,9

TABLEAU 1 Teneurs en ^{226}Ra et en ^{238}U observées dans des échantillons d'engrais phosphatés.

Quant aux scories basiques, les résultats d'analyse ont montré qu'elles contiennent, en moyenne, 70 fois moins de ^{226}Ra que les phosphates minéraux d'origine naturelle.

3. TRANSFERT DE ^{226}Ra DANS LA CHAÎNE ALIMENTAIRE, ACTIVITÉS INGERÉES ET DOSE RESULTANTE.

L'apport annuel, aux terres cultivées, de ^{226}Ra et ^{238}U provenant de l'application d'engrais phosphatés d'origine minérale, est estimé dans le tableau 2.

Engrais	Quantités appliquées (kg.ha^{-1})	^{226}Ra ($\mu\text{Ci.ha}^{-1}$)	^{238}U (g.ha^{-1})
Super simple (18%)	412,5	10,4	25,9
Super double (40%)	187,5	3,5	20,6
Bicalcique (40%)	187,5	0,5	6,7
Phosphate naturel (33%)	225	8,2	24,4

TABLEAU 2 Estimation de l'apport annuel de ^{226}Ra et ^{238}U sur base d'une application de 75 unités $\text{P}_2\text{O}_5.\text{ha}^{-1}$ comme fumure d'entretien.

Des études antérieures ont montré (1) que le radium migre très peu dans le sol, on peut donc admettre qu'il reste dans la zone d'application : couche labourée (0-50 cm) et horizon superficiel des prairies (0-10 cm). Si l'on considère le cas d'application de "super" simple, la teneur en ^{226}Ra est respectivement de 2,4 pCi/kg de sol labouré et de 13 pCi/kg sol de prairie.

En utilisant les valeurs du facteur de passage sol- plante (1), la contamination de divers aliments d'origine végétale a été calculée et figure dans le tableau 3. Par ailleurs l'apport en ^{226}Ra à l'herbe résultant de l'application annuelle de "super" simple est estimé être de 0,6 pCi/kg matière sèche. Or le rapport observé R.O. (lait/herbe) est de 0,01 (2) ce qui permet d'estimer le niveau de contamination du lait produit par les vaches pâturent l'herbe ayant 0,6 pCi/kg matière sèche, à 10^{-3} pCi $^{226}\text{Ra}/\text{l}$.

Etant donné que l'exportation du ^{226}Ra par la production végétale est très faible ($< 0,1\%$ /an), on peut considérer qu'après 50 années consécutives d'application, les teneurs du sol, des végétaux et du lait seront 50 fois plus élevées.

L'ingestion annuelle de ^{226}Ra provenant de ces produits agricoles est indiquée dans le tableau 3, cette ingestion étant basée sur le régime alimentaire moyen de la population belge (3).

Aliment	Quantité consommée (kg.an ⁻¹ .individu ⁻¹)	Teneurs en ^{226}Ra (pCi/kg Mat.fraîche)		Ingestion annuelle pCi ^{226}Ra	
		Après 1 an d'applicat.	Après 50 ans d'applicat.	Après 1 an d'applicat.	Après 50ans d'applicat.
Lait	131,4	0,001	0,05	0,13	6,6
Légumes	56	0,17	8,5	9,5	476
Pommes de terre	122	0,01	0,5	1,2	61
Céréales (grains)	81	0,036	1,8	2,9	146
Total				13,7	690

TABLEAU 3 Estimation de l'ingestion annuelle de ^{226}Ra provenant d'aliments produits sur un sol sableux, légèrement humifère, recevant une fumure annuelle d'entretien de 75 unités $\text{P}_2\text{O}_5 \cdot \text{ha}^{-1}$, sous forme de superphosphate simple.

Selon les données de la C.I.P.R. pour l'exposition continue des travailleurs, la CMA eau est de 10^{-7} Ci $^{226}\text{Ra}/\text{m}^3$ ce qui correspond à une ingestion journalière de 220 pCi soit 80 nCi par an; une ingestion continue de ^{226}Ra à ce niveau conduit, après 50 ans, à une dose effective à l'os de 30 rem/an. La C.I.P.R. recommande pour la population dans son ensemble le 1/30 de la valeur de l'exposition professionnelle, soit donc une ingestion maximale admissible de 2,7 nCi par an dans le cas présent.

L'ingestion annuelle de 690 pCi de ^{226}Ra provenant d'aliments (tableau 3) représente environ 25% du niveau admissible recommandé par la C.I.P.R. pour la population et correspond à une dose individuelle de 250 mrem/an à l'os.

4. DISCUSSION ET CONCLUSION.

Les ingestions de ^{226}Ra mentionnées dans le tableau 3 sont relatives aux aliments produits dans une zone sablonneuse mais dans le cas d'apport d'engrais phosphaté, en quantité égale, à un sol brun acide, par exemple, le niveau de contamination des aliments sera environ 9 fois plus faible en raison de la fixation plus intense du ^{226}Ra par le sol, diminuant ainsi la disponibilité de transfert vers le végétal.

En ce qui concerne la contribution relative des divers aliments considérés, on constate que la contribution la plus élevée est constituée par les végétaux consommés comme tels (légumes et farine); la contribution due aux tubercules de pommes de terre est moins prononcée et celle due à la consommation de lait représente environ 1% de l'activité totale ingérée.

A titre de comparaison, l'ingestion annuelle de ^{226}Ra par le régime alimentaire, évaluée par Michelson (4) pour la diète totale de quatre villes des Etats-Unis est de 1100 pCi; le maximum étant de 1600 pCi et le minimum de 800 pCi. En Allemagne (5), Muth estime l'ingestion journalière à 3 pCi soit une valeur analogue à celle des Etats-Unis.

En conclusion, contrairement aux scories basiques, les engrais phosphatés préparés à partir des phosphates minéraux contiennent par "carry-over" une quantité non négligeable de ^{226}Ra , ce qui peut entraîner une augmentation de l'exposition de la population notamment par transfert le long de la chaîne alimentaire de ce radionuclide ostéotrope.

REFERENCES

- (1) KIRCHMANN, R., LAFONTAINE, A., CANTILLON, G., BOULENGER, R. "Etude du cycle biologique parcouru par la radioactivité", BLG 477 (fév.1973).
- (2) KIRCHMANN, R., VAN DEN HOEK, J., VAN PUymbroeck, S., "Rapport observé, en conditions naturelles, entre les teneurs de l'herbage et du lait en radiostrontium et en radium". Actes du Congrès International sur la radioprotection du milieu devant le développement des utilisations pacifiques de l'Energie Nucléaire. Toulouse 357-367 (1967).
- (3) CANTILLON, G.E. "Archives belges de Médecine Sociale" Médecine du Travail et Médecine Légale, n°1 (1968).
- (4) MICHELSON, I. "Radium-226 in the total diet", Health Physics 5 229 (1961).
- (5) MUTH, H., RAJEWsky, B., HANTKE, H.J., AURAND, K. Health Physics 2 239 (1960).