

Valeur Guide Environnementale (VGE) et valeurs de référence spécifiques (QS) pour l'uranium

Synthèse et éléments pour l'application aux
eaux douces françaises

IRSN/PRP-ENV/SERIS/2015-004

**Pôle radioprotection, environnement, déchets
et crise**

Service de recherche et d'Expertise sur les RISques environnementaux

RESUME

Dans le cadre des protocoles le liant à la DGPR-MSNR, l'IRSN a initié en 2009 une série de travaux dont l'objectif finalisé est de déterminer des critères de protection des écosystèmes aquatiques continentaux vis-à-vis de l'uranium. Ce rapport constitue la synthèse des résultats et des conclusions des travaux menés.

Les travaux réalisés par l'IRSN depuis 2009 ont permis de déterminer différents critères de protection des écosystèmes aquatiques continentaux vis-à-vis de l'uranium. Tout d'abord, une valeur guide environnementale (VGE = $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$ à utiliser en incrément du bruit de fond) a été retenue, visant la protection générique (i.e. quel que soit l'écosystème) de la santé humaine et de l'environnement. Cette valeur a été déterminée selon les recommandations du TGD-EQS (EC, 2011) pour l'évaluation de l'état écologique et de l'état chimique des masses d'eau. Par ailleurs, les travaux de l'IRSN ont confirmé que cette VGE est également conservative vis-à-vis du critère de protection radiologique des écosystèmes de $10 \mu\text{Gy h}^{-1}$.

Par ailleurs, des valeurs de référence spécifiques applicables dans l'eau visant la protection des organismes pélagiques d'eau douce ont par ailleurs été déterminées pour une utilisation en évaluation des risques. La Concentration Moyenne Annuelle applicable pour une situation d'exposition chronique ($\text{AA-QS}_{w,eco} = 0,3 \mu\text{g L}^{-1}$) est très proche de la Concentration Maximale Admissible applicable en situation aiguë ($\text{MAC-QS}_{w,eco} = 0,4 \mu\text{g.L}^{-1}$). De même que pour la VGE, ces valeurs s'appliquent en incrément du fond géochimique selon l'approche en « risque ajouté », sauf si le fond géochimique est inférieur à ces valeurs, auquel cas l'approche en « risque total » s'applique. Enfin, les connaissances actuelles sur la biodisponibilité de l'uranium ont permis d'établir une arbre de détermination (Figure 1) définissant quatre classes physico-chimiques, pour lesquels des $\text{QS}_{w,eco}$ conditionnels de $0,3$ à $30 \mu\text{g L}^{-1}$ ont été définis.

A l'issue de ce travail, un certain nombre de limites et de perspectives ont été relevées.

MOTS-CLES

Uranium, Valeur Guide Environnementale, valeurs de référence spécifiques, eau, sédiment, biodisponibilité

SOMMAIRE

GLOSSAIRE	6
PREAMBULE	9
1 INTRODUCTION : RAPPEL METHODOLOGIQUE POUR LA DETERMINATION D'UNE VALEUR GUIDE ENVIRONNEMENTALE POUR L'URANIUM	10
2 SYNTHESE DES VALEURS DE REFERENCE SPECIFIQUES DETERMINEES POUR L'URANIUM	13
2.1 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DES ORGANISMES PELAGIQUES D'EAU DOUCE, HORS PREDATEURS ($QS_{W,ECO}$).....	13
2.2 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DES ORGANISMES BENTHIQUES ($QS_{SED,ECO}$)	14
2.3 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DES PREDATEURS SUPERIEURS CONTRE UN EMPOISONNEMENT SECONDAIRE ($QS_{BIOTA,SECPOIS,W}$)	15
2.4 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DE LA SANTE HUMAINE CONTRE UN RISQUE D'EXPOSITION VIA LA CONSOMMATION DE PRODUITS DE LA PECHE ($QS_{BIOTA,HH FOOD}$)	15
2.5 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DE LA SANTE HUMAINE AU REGARD DE LA CONSOMMATION D'EAU DE BOISSON ($QS_{DW,HH}$).....	16
3 DETERMINATION DE LA VGE ET APPLICATION	17
3.1 DETERMINATION DE LA VGE.....	17
3.2 APPLICATION DE LA VGE.....	17
3.3 COHERENCE AVEC LE CRITERE DE RADIOPROTECTION DE L'ENVIRONNEMENT APPLIQUE A L'EAU ET AUX SEDIMENTS	19
4 DETERMINATION DE $QS_{W,ECO}$ CONDITIONNELS ET APPLICATION	20
4.1.1 Méthodologie de détermination des $QS_{w,eco}$ conditionnels	20
4.1.2 $QS_{w,eco}$ conditionnels	21
4.1.3 Domaine d'application des $QS_{w,eco}$ conditionnels	22
4.1.4 Application des $QS_{w,eco}$ dans une approche graduée	22
5 CONCLUSION ET PERSPECTIVES	24
6 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	27
6.1 LISTE CHRONOLOGIQUE DES RAPPORTS DE L'IRSN RELATIFS A LA DETERMINATION DE LA VGE DE L'URANIUM EN EAU DOUCE	27
6.2 REFERENCES EXTERNES	28

GLOSSAIRE

Aiguë : se dit d'une exposition reçue pendant une période de temps courte. Opposé à chronique.

(Added Risk Approach -ARA et Total Risk Approach - TRA)

AA-QS : Annual Average Quality Standard : valeur de référence spécifique définie en moyenne annuelle et destinée à protéger des effets d'une exposition prolongée (exposition chronique) les organismes d'un compartiment donné de l'environnement (e.g. colonne d'eau).

BCF (BioConcentration Factor) : facteur de bioconcentration, caractérisant le transfert entre l'eau et tout organisme aquatique (cf. figure ci-dessous). Ratio entre la concentration de la substance dans un organisme et sa concentration dans l'eau.

Biodisponibilité : Proportion de la quantité totale ou de la concentration d'un polluant présent dans l'environnement potentiellement disponible pour être bioaccumulée par un organisme vivant. Résultante des interactions entre le polluant étudié et les barrières biologiques de l'organisme.

BMF (BioMagnification Factor) : facteur de biomagnification, caractérisant le phénomène par lequel la concentration d'une substance internalisée s'accroît lors de son transfert aux maillons supérieurs d'un réseau trophique. Ratio entre la concentration de la substance dans un organisme et sa concentration dans la nourriture de cet organisme.

Chimiotoxicité : capacité d'une substance chimique incorporée à entraîner des effets nocifs (ou toxiques) pour l'organisme. La chimiotoxicité est liée à la dose de la substance exprimée en quantité, et fonction de sa concentration et du temps d'exposition.

Chronique : se dit d'une exposition prolongée, d'une durée significative par rapport à la durée de vie de l'organisme étudié. Généralement associé à la notion d'exposition continue à une faible concentration de polluant.

COD : Carbone Organique Dissous

CE_x% (notation anglo-saxonne : EC_x%) : concentration d'une substance qui cause un Effet de x% chez des individus exposés pendant une durée donnée par rapport au groupe témoin (non exposé).

CL_x% (notation anglo-saxonne : LC_x%) : concentration létale x%. Concentration d'une substance provoquant x % de mortalité dans une population exposée à cette dernière.

DCE : Directive Cadre européenne sur l'eau (directive 2000/60/CE du 23 octobre 2000) définissant un cadre pour la gestion et la protection des eaux par grand bassin hydrographique au plan européen.

DGPR-MSNR : Mission sûreté nucléaire et radioprotection. Placée au sein de la DGPR (direction générale de la prévention des risques du Ministère de l'écologie, du développement durable et de l'énergie), elle assiste les ministres chargés de la sûreté nucléaire et de la radioprotection.

EQS : Environmental Quality Standard : norme de qualité environnementale (cf. NQE)

FOREGS : Forum of European Geological Surveys, groupe d'instituts de géologie de 26 pays européens. Le FOREGS a réalisé un programme de cartographie de références géochimiques à l'échelle européenne (Geochemical Baseline Mapping Programme). Ses activités ont été reprises par l'EuroGeoSurveys.

Fond géochimique : un fond géochimique « pseudo-naturel » ou fond géochimique « ambiant » est défini comme la concentration naturelle en métaux dissous issue de l'altération des roches, de l'érosion et des retombées de poussières naturelles et anthropiques intégrant une faible part de l'influence anthropique. Nous utilisons dans ce rapport la dénomination « fond géochimique » et non pas le terme

de « bruit de fond » qui est un abus de langage (Chandersis et al., 2013). Le terme utilisé en anglais est « background concentration » ou « background reference concentration ». La dénomination exacte en français est « fond géochimique » ou « concentration de fond naturelle ».

GEP-mines : Groupe d'Expertise Pluraliste sur les sites miniers d'uranium du Limousin (<http://www.gep-nucleaire.org/gep>)

Hydroécocorégion : Zone homogène du point de vue de la géologie, du relief et du climat. C'est l'un des principaux critères utilisés dans la typologie et la délimitation des masses d'eau de surface. La France métropolitaine peut être décomposée en 21 hydro-écocorégions principales.

ICP-MS : Inductively coupled plasma mass spectrometry, spectrométrie par torche à plasma (méthode d'analyse chimique multi-élémentaire aux niveaux traces)

Masse d'eau : Portion de cours d'eau, canal, aquifère, plan d'eau ou zone côtière homogène. Il s'agit d'un découpage élémentaire des milieux aquatiques destinée à être l'unité d'évaluation de la DCE. Une masse d'eau de surface est une partie distincte et significative des eaux de surface, telles qu'un lac, un réservoir, une rivière, un fleuve ou un canal, une partie de rivière, de fleuve ou de canal, une eau de transition ou une portion d'eaux côtières. Pour les cours d'eau la délimitation des masses d'eau est basée principalement sur la taille du cours d'eau et la notion d'hydroécocorégion. Les masses d'eau sont regroupées en types homogènes qui servent de base à la définition de la notion de bon état.

MAC-QS Maximum Acceptable Concentration Quality Standard : valeur de référence spécifique définie par la concentration maximale admissible assurant la protection des organismes d'un compartiment donné contre les effets potentiels des pics de concentration à court terme (exposition aiguë).

NOEC : No Observed Effect Concentration. Lors de l'établissement de relations concentration-effets, la NOEC est la plus forte concentration testée ne produisant pas un effet statistiquement significatif par rapport au groupe témoin, non exposé.

NOAEL : No Observed Adverse Effect Level. Dose la plus élevée pour laquelle il n'y pas d'augmentation significative statistiquement (ou biologiquement) en fréquence ou en sévérité d'un effet nocif, dans un groupe exposé à la substance par rapport à un groupe non exposé.

NQE : Norme de Qualité Environnementale (cf. EQS): concentration d'un polluant ou d'un groupe de polluants dans l'eau, les sédiments ou le biote qui ne doit pas être dépassée, afin de protéger la santé humaine et l'environnement (définition 35 de l'article 2 de la DCE). Valeur limite édictée dans le cadre d'une réglementation, représentant une contrainte administrative forte.

PNEC : Predicted No Effect Concentration : concentration d'une substance prédite sans effet pour un vecteur d'exposition donné, destinée à protéger tout ou partie des espèces exposées à cette substance par ce vecteur.

PNEDR - Predicted No Effect Dose Rate : débit de dose prédit sans effet chronique sur les espèces exposées des écosystèmes.

QS : Quality Standard : valeur de référence spécifique s'appliquant à un compartiment donné :

$QS_{w,eco}$: valeur de référence spécifique applicable dans l'eau visant la protection des organismes pélagiques d'eau douce, hors prédateurs

$QS_{dw,hh}$: valeur de référence spécifique visant la protection de la santé humaine au regard de la consommation d'eau de boisson

$QS_{\text{sédiment}}$: valeur de référence spécifique applicable dans les sédiments visant la protection des organismes benthiques d'eau douce contre une écotoxicité directe

$QS_{\text{biota, sec pois, w}}$: valeur de référence spécifique applicable dans le biote visant la protection des prédateurs supérieurs (mammifères, oiseaux) contre un empoisonnement secondaire

$QS_{\text{biota, hh food}}$: valeur de référence spécifique applicable dans l'eau (eaux de surface intérieures), visant la protection de la santé humaine contre un risque d'exposition chronique via la consommation de produits de la pêche (valeur convertie en une concentration équivalente dans l'eau via l'utilisation de BCF et BMF)

Radiotoxicité : capacité d'une substance radioactive incorporée à entraîner des effets nocifs (ou toxiques) pour l'organisme. La radiotoxicité est liée à la dose du radiolément ou de l'isotope exprimée en quantité d'énergie absorbée par unité de masse de matière (exprimée en Gray ou Gray par unité de temps avec $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}$).

Récepteur : catégorie d'organisme exposée à la substance d'intérêt (humains, organismes pélagiques, organismes inféodés au sédiment, prédateurs)

Spéciation : différentes formes sous lesquelles un élément chimique est présent dans un milieu donné. Chaque forme physique (soluble, colloïdale ou particulaire, voire forme associée aux phases solides) est définie par : sa composition chimique et son degré d'oxydation (contribution des diverses espèces chimiques) ; ses caractéristiques physiques détaillées ; et ses effets biochimiques et toxicologiques.

SSD : Species Sensitivity Distribution : Distribution de sensibilité des espèces, loi de distribution statistique de la sensibilité des espèces à un stressor. Établie à partir des données d'écotoxicité d'une ou plusieurs substances toxiques pour des espèces testées en laboratoire. L'hypothèse de base est que cet ensemble d'espèces constitue un échantillon représentatif de toutes les espèces composant la communauté ou l'écosystème.

TGD-EQS : Technical Guidance For Deriving Environmental Quality Standards (EC, 2011). Guide technique pour la détermination de NQE. La méthodologie a été synthétisée par l'INERIS dans un document en langue française (INERIS, 2011).

VGE : Valeur Guide Environnementale : concentration indicative d'un polluant ou d'un groupe de polluants dans l'eau, les sédiments ou le biote à ne pas dépasser afin de protéger la santé humaine et l'environnement. Valeur déterminée selon la même méthodologie que la NQE, mais sans portée réglementaire (INERIS, 2013), en général recommandée par une autorité et utilisée avec un jugement professionnel. Elle constitue un objectif cible de qualité.

Voie d'exposition : Voie de passage d'une substance de la source vers une cible. Une voie d'exposition inclut une source, un point d'exposition et une voie d'administration. Si le point d'exposition diffère de la source, il existe également un mécanisme de propagation et un compartiment intermédiaire où le polluant est transporté (MEDDE, 2013. http://www.developpement-durable.gouv.fr/spip.php?page=doc&id_article=19455, page consultée le 23 juillet 2013).

PREAMBULE

A la suite de sa contribution aux travaux du GEP-mines et à la demande de la DGPR-MSNR, dans le cadre des protocoles la liant à l'IRSN, l'Institut a initié en 2009 une série de travaux dont l'objectif finalisé est de **déterminer des critères de protection des écosystèmes aquatiques continentaux vis-à-vis de l'uranium**. Ces six années de travaux ont donné lieu à une documentation riche. Afin de guider le lecteur intéressé par la thématique traitée et les documents associés, le récapitulatif des livrables produits dans ce contexte est rappelé ci-dessous, pour chacune des 4 rubriques qui ont été abordées.

Approches méthodologiques pour la détermination des critères de protection

- **Rapport IRSN/DEI/SECRE/2009-015** - Vers la proposition d'une norme de qualité environnementale pour l'uranium en eau douce, 70 pages. **Karine Beaugelin-Seiller, Jacqueline Garnier-Laplace, Rodolphe Gilbin.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-023** - Évolutions récentes des méthodes de détermination des critères de protection des écosystèmes aquatiques. Conséquences pour l'uranium, 30 p. **Karine Beaugelin-Seiller.**

Compartiment Eau

- **Rapport IRSN/DEI/SECRE/2010-038** - Proposition de valeurs de PNEC chronique et aiguë pour l'uranium : valeurs génériques et conditionnelles aux domaines physico-chimiques des eaux douces considérées, 69 pages. **Karine Beaugelin-Seiller, Laureline Février, Jacqueline Garnier-Laplace, Rodolphe Gilbin.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-035** - Prise en compte de la matière organique dissoute pour la détermination de PNEC uranium conditionnelles aux domaines physico-chimiques des eaux douces, analyse de sensibilité, 48 pages. **Laureline Février, Frédéric Coppin.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-024** - Bruit de fond géochimique de l'uranium dans les eaux de rivière de métropole - Approche méthodologique, 48 pages. **Karine Beaugelin-Seiller.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-041** - Intégration opérationnelle de la matière organique dans la détermination des valeurs génériques et conditionnelles des PNEC_{eau} de l'uranium. Application au domaine physico-chimique des eaux douces françaises, 83 p. **Laureline Février, Karine Beaugelin-Seiller, Rodolphe Gilbin.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2014-028** - Proposition de valeurs de PNEC_{eau} de l'uranium conditionnelles à des domaines physico-chimiques représentatifs des eaux douces françaises, 104 p. **Laureline Février, Rodolphe Gilbin.**

Compartiment sédiment

- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-029** - Écotoxicité de l'uranium associé au sédiment pour les écosystèmes d'eau douce : état de l'art et premiers éléments pour la détermination de la norme de qualité spécifique (QS_{sédiment}), 23 pages. **Olivier Simon.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-040** - Acquisition de nouvelles valeurs d'écotoxicité chronique en support de la détermination d'une norme de qualité spécifique du sédiment (QS_{sédiment}) pour l'uranium, 81 p. **Olivier Simon, Rodolphe Gilbin.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2014-030** - Résultats de tests d'écotoxicité en support de la détermination d'une norme de qualité spécifique du sédiment (QS_{sédiment}) pour l'uranium, 20 p. **Olivier Simon, Loïc Carasco, Rodolphe Gilbin, Karine Beaugelin-Seiller.**

Autres critères

- **Rapport IRSN/DEI/SECRE/2011-028** - Intégration du critère de radioprotection de l'environnement dans la NQE de l'uranium : application à l'eau et aux sédiments, 44 pages. **Karine Beaugelin-Seiller.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-030** - Évaluation du risque écologique chimiotoxique associé aux substances autres que l'uranium présentes dans les effluents liquides des anciens sites miniers uranifères, 31 pages. **Béatrice Gagnaire.**
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-030** - Empoisonnement secondaire par l'uranium en milieu aquatique continental. État des connaissances, 24 p. **Karine Beaugelin-Seiller.**

1 INTRODUCTION : RAPPEL METHODOLOGIQUE POUR LA DETERMINATION D'UNE VALEUR GUIDE ENVIRONNEMENTALE POUR L'URANIUM

Un socle méthodologique défini par la Directive Cadre européenne sur l'eau

La Directive Cadre européenne sur l'eau (DCE, directive 2000/60/CE du 23 octobre 2000) définit un cadre pour la gestion et la protection des eaux par grand bassin hydrographique au plan européen. Elle fixe des objectifs pour la préservation et la restauration de l'état des eaux superficielles (eaux douces et eaux côtières) et pour les eaux souterraines. Afin de prévenir et réduire la pollution des eaux, les concentrations dans le milieu des substances polluantes sont comparées à une Norme de Qualité Environnementale (NQE) qui ne doit pas être dépassée, afin de protéger la santé humaine et l'environnement. La détermination de ces normes suit une méthodologie qui a été élaborée au niveau européen (Technical Guidance For Deriving Environmental Quality Standards, ou TGD-EQS ; EC, 2011) qui a été synthétisée par l'INERIS dans un document en langue française (INERIS, 2011). Des NQE ont ainsi été déterminées, et ont fait l'objet d'un consensus européen, pour une liste des substances dites « prioritaires » dans le cadre de l'établissement des états chimiques (annexe X de la DCE). En complément de la liste des substances prioritaires, une liste de substances dites « pertinentes » est établie au niveau national, la détermination des NQE associées ayant alors un statut réglementaire dans le cadre de l'établissement des états chimiques et écologiques au niveau national (liste indicative fournie en Annexe VIII de la DCE). Leur détermination est établie selon la même méthodologie que celle adoptée pour les substances prioritaires (TGD-EQS ; EC, 2011). En France, l'INERIS propose au titre de ses missions d'appui technique au ministère chargé de l'écologie, des Valeurs Guides Environnementales (VGE)¹ pour une série de substances potentiellement pertinentes. Celles-ci peuvent le cas échéant être reprises par le Ministère en charge de l'écologie pour l'établissement de seuils à valeur réglementaire (c'est à dire des NQE), et s'appliquer aux substances de l'état écologique des masses d'eau dans des arrêtés de portée nationale.

Méthodologie pour déterminer une Valeur Guide Environnementale (VGE)

La méthodologie du TGD-EQS (EC, 2011 ; INERIS, 2011) à adopter pour la détermination de Valeurs Guides Environnementales (VGE) est synthétisée dans les rapports IRSN-SERIS 2009-015 et 2013-023. Elle repose en particulier sur l'utilisation de données d'écotoxicité disponibles, obtenues en laboratoire ou sur le terrain, pour définir une « concentration dans l'eau, les sédiments ou le biote qui ne doit pas être dépassée, afin de protéger la santé humaine et l'environnement ». Elle nécessite donc de couvrir les différents compartiments (l'eau, les sédiments et le biote), dans l'optique de la protection intégrée des récepteurs (les organismes aquatiques pélagiques et les organismes benthiques d'eau douce², les prédateurs supérieurs (mammifères, oiseaux) et

¹ http://www.ineris.fr/substances/uploads/content/DRC-14-136849-02119B_NQE-VGE_INERIS_v20140505.xls

² la protection des organismes vivant dans les eaux et sédiments marins n'a pas été considéré dans le cadre du présent travail.

l'homme). Pour chaque récepteur, une valeur de référence spécifique (QS- Quality Standard) est déterminée au regard des compartiments d'intérêt considérés :

- exposition directe à l'eau des organismes pélagiques d'eau douce, hors prédateurs ($QS_{w,eco}$) ;
- exposition aux sédiments des organismes benthiques d'eau douce ($QS_{sed,eco}$) ;
- empoisonnement secondaire des prédateurs supérieurs ($QS_{biota,secpois,w}$) ;
- consommation humaine des produits de la pêche ($QS_{biota, hh food}$) ;
- consommation humaine d'eau de boisson ($QS_{dw,hh}$).

Afin d'assurer la protection du récepteur le plus sensible, la VGE retenue correspond au plus faible des QS, exprimée pour chaque compartiment au regard de sa concentration dans l'eau.

L'application de la VGE considère la présence éventuelle de la substance dans les masses d'eau en l'absence de modification anthropique, ce qui est généralement le cas pour les métaux, qui présentent un fond géochimique. Pour la prise en compte de ce fond géochimique, la VGE est alors à utiliser en incrément du fond géochimique de l'hydroécocorégion considérée (approche en « risque ajouté). Dans le cas contraire (ou si le fond géochimique n'est pas connu), une approche en « risque total » est retenue sans considérer le fond géochimique.

Détermination de valeurs de référence spécifiques visant la protection des organismes pélagiques ($QS_{w,eco}$) pour un usage particulier

La VGE décrite ci-dessus vise à couvrir, de manière générique pour tous les compartiments, la protection de la santé humaine et des écosystèmes au regard d'une exposition chronique. Concernant le compartiment eau, des valeurs de référence spécifiques peuvent être déterminées pour une évaluation du risque spécifique à ce compartiment, soit en considérant la fluctuation de concentrations, soit en considérant la biodisponibilité :

Concentration Annuelle Moyenne et Concentration Maximale Acceptable dans l'eau

Il est admis que la colonne d'eau, dans laquelle les concentrations peuvent varier beaucoup plus rapidement que dans les sédiments ou les organismes, doit faire l'objet d'une protection au regard d'une exposition à long terme, assimilable à une situation chronique, mais aussi à court terme, comparable à une condition aiguë. Afin de prendre en compte ces fluctuations de concentrations dans les eaux douces, le TGD-EQS (EC, 2011) définit deux types de valeurs de référence spécifique pour les organismes pélagiques. L'AA- $QS_{w,eco}$, définit une Concentration Annuelle Moyenne, pour protéger les organismes des effets chroniques correspondant à des expositions prolongées (cette valeur est identique au $QS_{w,eco}$ utilisé pour la détermination de la VGE). Le MAC- $QS_{w,eco}$, définit une Concentration Maximale Acceptable, destinée à protéger les organismes des effets à court terme (aigus) correspondant par exemple à un pic de concentration et/ou des rejets intermittents d'une substance. Cette valeur seuil ne concerne alors que les organismes pélagiques d'eau douce et n'est pas pertinente pour les autres objectifs de protection. Au même titre que pour la VGE, l'application des $QS_{w,eco}$ considère la présence éventuelle d'un fond géochimique de la substance dans le milieu en l'absence de modification anthropique.

Valeurs de référence spécifiques conditionnelles dans l'eau pour les organismes pélagiques

Les métaux comme l'uranium sont présents dans l'eau sous diverses formes chimiques, plus ou moins biodisponibles. Le TGD-EQS (EC, 2011) propose de considérer la biodisponibilité des métaux pour l'élaboration de valeurs de référence spécifiques « biodisponibles », afin de considérer les spécificités liées à la chimie des eaux (i.e. paramètres physico-chimiques influençant la biodisponibilité et la toxicité directe du métal envers les organismes aquatiques pélagiques).

A ce jour, les modèles permettant la prise en compte de la biodisponibilité des métaux, par exemple BLM (Biotic Ligand Model), ne sont pleinement développés que pour quelques éléments (Cu et Cd essentiellement). Toutefois, les connaissances disponibles pour l'uranium pour la voie d'exposition directe à l'eau permettent d'envisager la proposition de $QS_{w,eco}$ conditionnels à la composition physico-chimique des eaux considérées.

Une VGE et des valeurs de référence spécifiques dans l'eau pour l'uranium

Il s'agit tout d'abord de mettre à la disposition de la DGPR-MSNR une **VGE pour l'uranium** visant la protection de la santé humaine et l'environnement dans un cadre cohérent avec celui des NQE, afin de permettre le cas échéant l'établissement de seuils pour la gestion des masses d'eau. La détermination de la VGE pour l'uranium nécessite de considérer deux propriétés liées à la nature de cet élément :

- comme tous les métaux, l'uranium présente un **fond géochimique** en l'absence de toute modification anthropique. L'application de l'approche en « risque ajouté » ou « risque total » a donc été considérée.
- L'uranium est aussi un radioélément qui présente une certaine **radiotoxicité**. Il est établi qu'en général sa chimiotoxicité domine sur sa radiotoxicité (Mathews *et al.*, 2009). Il s'agit cependant de déterminer dans quelle mesure la VGE, assurant la protection des organismes vis-à-vis de la chimiotoxicité de l'uranium, reste conservative vis-à-vis du critère de protection radiologique des écosystèmes.

Enfin, des **valeurs de référence spécifiques** visant la protection des organismes pélagiques d'eau douce ($QS_{w,eco}$) ont été déterminées en support à l'évaluation du risque pour ce récepteur. L'uranium étant un métal ayant une spéciation chimique complexe dans l'eau, la détermination de valeurs de référence spécifiques conditionnelles pour les espèces pélagiques ($QS_{w,eco}$ conditionnelles) a été plus particulièrement explorée.

Afin de répondre à l'ensemble de ces points, ce rapport présente la synthèse des valeurs proposées pour chacune des composantes de la VGE (chapitre 2). La détermination de la VGE et de son domaine d'application est proposée (chapitre 3). Enfin, la détermination de $QS_{w,eco}$ conditionnels à la composition physico-chimique des eaux douces de surface est présentée (chapitre 4). Les principales conclusions et perspectives sont présentées au chapitre 5.

2 SYNTHÈSE DES VALEURS DE RÉFÉRENCE SPÉCIFIQUES DÉTERMINÉES POUR L'URANIUM

Deux méthodologies existent pour déterminer un QS pour un récepteur et compartiment donnés (cf. rapport IRSN-SECRE 2009-015 pour une description détaillée de la méthode, et son évolution récente dans le rapport IRSN-SERIS 2013-023). Selon la méthode la plus simple, dite des facteurs d'extrapolation (appelés aussi facteurs de sécurité), le QS est obtenu en divisant la plus petite valeur parmi les LC(E)50 issues de tests aigus ou les NOEC issues de tests chroniques par un facteur d'extrapolation, posant l'hypothèse que la sensibilité du récepteur (communauté ou écosystème) dépend de l'espèce la plus sensible, et que protéger la structure de l'écosystème en protège le fonctionnement. D'autre part, si la qualité et la quantité des données disponibles est suffisante, les QS peuvent aussi être calculés à partir de modèles d'extrapolation statistiques (ex. concentration protégeant 95 % des espèces) établis sous l'hypothèse que la gamme de variation de la sensibilité des espèces testées est représentative de celle de toutes les espèces au sein d'un écosystème.

Dans les deux cas, un facteur d'extrapolation adapté permet de prendre en compte les diverses extrapolations nécessaires (des effets d'écotoxicité aiguë vers ceux d'écotoxicité chronique ; pour une espèce, depuis un stade du cycle de vie vers la totalité du cycle ; depuis l'individu à la population ; depuis une espèce à l'autre ; depuis une voie d'exposition à l'autre ; depuis des effets directs à des effets indirects ; d'un écosystème à l'autre).

Pour chacune des composantes de la VGE, les données ont été considérées comme recevables uniquement si la publication d'origine contenait suffisamment d'informations sur les organismes testés et les conditions d'expérimentation (durée, milieu d'exposition, critère d'effet...), afin de juger de leur pertinence écologique. Dans le cas contraire, les données ont été rejetées. Cette approche implique par conséquent une part de jugement d'expert. Afin d'assurer la meilleure cohérence possible avec les travaux en cours pour la détermination de VGE pour les substances d'intérêt au titre de la DCE, les travaux réalisés par l'IRSN ont été présentés régulièrement à des experts extérieurs (Groupe de Travail NQE de l'INERIS) et discutés lors de chacun des bilans annuels avec la MSNR.

2.1 VALEUR DE RÉFÉRENCE SPÉCIFIQUE VISANT LA PROTECTION DES ORGANISMES PELAGIQUES D'EAU DOUCE, HORS PREDATEURS (QS_{w,eco})

Le travail effectué jusqu'à ce jour par l'IRSN a permis de proposer des valeurs de QS_{w,eco} chronique ou aiguë pour l'uranium en eau douce (rapports IRSN-SECRE 2010-038 ; IRSN-SERIS 2012-030, 2013-041 et 2014-028).

Étant donné le faible nombre de données d'écotoxicité chronique recensées, la seule méthode de dérivation du QS_{w,eco} applicable à ce jour est celle des facteurs d'extrapolation : disposant de données d'écotoxicité chronique sur au moins 3 taxons, un facteur d'extrapolation de 10 est appliqué à la plus faible donnée d'écotoxicité chronique, publiée par Pickett *et al.* (1993) sur crustacés (NOEC à 7j de 2,7 µg L⁻¹). La valeur d'AA-QS_{w,eco} chronique égale à 0,3 µg L⁻¹ a ainsi été retenue, confirmant celle établie par l'INERIS¹.

Concernant l'écotoxicité aiguë, les plus faibles valeurs d'écotoxicité publiées concernent les algues. L'IC₅₀ (concentration inhibant la croissance de populations algales de 50 %) la plus faible reportée est de 13 µg L⁻¹, obtenue en milieu totalement dépourvu de carbone organique (Trenfield *et al.*, 2011). Les deux valeurs immédiatement supérieures sont de 35 et 38 µg L⁻¹, ce qui est cohérent avec la CE₅₀ de 37 µg L⁻¹ également déterminée sur algues par Pradines *et al.* (2005), elle-même en accord avec la CE₅₀ sur crustacés reportée par Markich et Camilleri (1997), et évaluée à 39 µg L⁻¹. Considérant les conditions d'obtention de l'IC₅₀ de 13 µg L⁻¹, et la remarquable convergence des autres résultats, la MAC-QS_{w,eco} aiguë proposée est de 0,4 µg.L⁻¹.

2.2 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DES ORGANISMES BENTHIQUES (QS_{SED,ECO})

La méthode de détermination du QS_{sed,eco} décrite dans le document guide TGD-EQS (EC, 2011), recommande de considérer en priorité les données d'écotoxicité issues de tests chroniques conduits en conditions favorisant la disponibilité du contaminant. Dans le cas des métaux, il s'agit de privilégier les résultats obtenus en conditions aérobies, avec des concentrations faibles en AVS (sulfures acido-solubles à froid, en concentrations inférieures à 1 µmol g⁻¹ poids sec).

Les données disponibles concernant l'écotoxicité de l'uranium pour le compartiment sédimentaire sont rares (rapport IRSN-SERIS 2012-029). Le jeu de données a donc été complété *via* l'acquisition expérimentale de nouvelles données d'écotoxicité chroniques (rapports IRSN-SERIS 2013-040 et 2014-030) dans des conditions favorisant *a priori* la biodisponibilité de l'uranium (sédiment artificiel reconstitué). Les valeurs obtenues, qui confirment l'ordre de grandeur des valeurs d'écotoxicité préalablement recensées dans la littérature, ont été jugées recevables pour les 3 taxons testés, à savoir *Hyallorella azteca* (NOEC = 40 mg kg⁻¹, poids sec), *Chironomus sp.* (NOEC = 62 mg kg⁻¹, poids sec), et *Myriophyllum aquaticum* (NOEC = 100 mg kg⁻¹, poids sec).

Ainsi, l'acquisition de données d'écotoxicité sur trois taxons différents a permis de retenir un facteur d'extrapolation de 10, conduisant à un QS_{sed,eco} de l'uranium de 4 mg kg⁻¹, poids sec (en appliquant ce facteur d'extrapolation à la plus faible des NOECs déterminées, soit la valeur obtenue pour l'essai OCDE 218/ISO/DIS16303 sur *Hyallorella azteca*).

Enfin, il est possible d'exprimer le QS_{sed,eco} au regard d'une concentration équivalente dans la colonne d'eau sous l'hypothèse d'un équilibre avec le sédiment, en appliquant la méthode de coefficient de partage à l'équilibre³ (rapport IRSN-SERIS 2012-029). Un tel « rétro » calcul, en considérant le cas majorant d'un coefficient de partage eau-sédiment maximal reporté dans la dernière revue conduite par l'AIEA (2010), conduit à une valeur de 2 µg L⁻¹.

³ $QS_{\text{sédiment, poids sec}} = RHO_{\text{sed}} / (F_{\text{solid}} \times RHO_{\text{solid}}) \times QS_{\text{sédiment, poids humide}}$
 $QS_{\text{sédiment, poids humide}} = (K_{\text{sed-wat}} / RHO_{\text{sed}}) \times QS_{\text{fw}} \times 1000$
 Avec : $F_{\text{solid}} = 20\%$; $RHO_{\text{solid}} = 2500 \text{ kg}_{\text{solid}} \text{ m}^{-3}_{\text{solid}}$; $RHO_{\text{sed}} = 1300 \text{ kg}_{\text{sed}} \text{ m}^{-3}_{\text{sed}}$; $K_{\text{sed-wat}} = 20 \text{ à } 1000$ (AIEA, 2010)

2.3 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DES PREDATEURS SUPERIEURS CONTRE UN EMPOISONNEMENT SECONDAIRE ($QS_{BIOTA,SECPOIS,W}$)

L'empoisonnement secondaire résulte de la contamination d'un prédateur par l'ingestion d'une proie contaminée. En pratique, les études d'écotoxicité relatives à la voie trophique sont rares, et plus rares encore lorsqu'il s'agit d'un transfert d'animal à animal. Concernant l'uranium, seules trois études touchant à la toxicité trophique en milieu aquatique continental ont été recensées (rapport IRSN-SERIS 2013-030), dont l'une seulement concerne la relation proie-prédateur. Aucune n'a été conduite dans l'optique de l'acquisition d'informations utilisables pour la dérivation d'un QS.

Par ailleurs, les recommandations portant sur la prise en compte de l'empoisonnement secondaire sont peu détaillées dans le TGD-EQS (EC, 2011). Consciente de ce déficit méthodologique et de connaissances, la communauté européenne recommande aujourd'hui de fonder la détermination du $QS_{biota,secpois,w}$ d'une substance sur les données d'écotoxicité chronique acquises sur les oiseaux et les mammifères. Dans cette optique, les revues de littérature réalisées en 2009 par l'EFSA et plus récemment par l'ATSDR (2013) dressent un état des lieux pertinent. Les conclusions de l'ATSDR sont édifiantes : seulement sept études ont été identifiées depuis 1949, ne concernant que 3 mammifères différents, des conditions expérimentales d'exposition peu réalistes, et d'une puissance statistique trop faible pour garantir la robustesse des résultats. Malgré cette faiblesse reconnue des données d'écotoxicité, des valeurs ont été proposées pour le $QS_{biota,secpois,w}$. Ainsi, le Danemark a publié une valeur de 0,015 $\mu\text{g L}^{-1}$ en 2011 (Miljoministeriet, 2011) dont la dérivation est discutable (rapport IRSN-SERIS 2013-030).

En l'absence d'informations complémentaires, la dérivation d'un $QS_{biota,secpois,w}$ pour l'uranium est à ce jour entachée d'une trop grande incertitude, donnant peu de sens à sa mise en œuvre opérationnelle.

2.4 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DE LA SANTE HUMAINE CONTRE UN RISQUE D'EXPOSITION VIA LA CONSOMMATION DE PRODUITS DE LA PECHE ($QS_{BIOTA, HH FOOD}$)

Il est généralement considéré que l'apport d'uranium dans le régime alimentaire humain résulte pour 80 (OMS, 2004) à 100% (WISE, 2011) de l'ingestion d'eau de boisson. Ainsi, la littérature traitant de l'empoisonnement par la nourriture est pauvre au regard des études portant sur la toxicité de l'uranium par l'eau de boisson. Un examen détaillé des données disponibles (rapport IRSN-SERIS 2013-30) a confirmé la rareté des études (7 références pour la contamination par la nourriture sur la période 1949-2013). La synthèse des données disponibles par l'EFSA en 2009 reporte que l'uranium présente une disponibilité systémique après ingestion variable selon les conditions d'administration, mais qui reste très faible (de 0,06 à 2,8% pour le rat et de 0,06 à 2% pour le lapin). La LOAEL la plus sensible reportée est relative à des pathologies rénales chez le lapin, estimée à 2.8 mg U kg^{-1} de masse corporelle j^{-1} , après 30 jours d'exposition (Maynard et Hodge, 1949). Une même valeur de LOAEL a été obtenue chez la souris, relative à une perte de poids et d'appétit chez des femelles exposées par gavage durant l'organogénèse, et une croissance réduite des fœtus (Domingo *et al.*, 1989).

Le profil de la toxicité de l'uranium récemment mis à jour par l'ATSDR (2013) ne comporte pas de nouveauté par rapport à celui proposé par l'EFSA (2009), et ces synthèses concluent toutes deux au besoin d'études supplémentaires de toxicité chronique animale en conditions contrôlées, pour l'établissement de relations dose-réponse moins incertaines concernant les effets délétères d'une exposition à l'uranium par ingestion de nourriture. **Ainsi, il a été considéré que les informations ne sont pas suffisantes pour dériver une valeur de référence spécifique au regard de l'exposition humaine par voie alimentaire.**

À titre d'information cependant, le Danemark, considérant une exposition individuelle de l'ordre de 10% à partir de produits de la mer, a proposé en 2011 un $QS_{\text{biota, hh food}}$ de $10 \mu\text{g kg}^{-1}$ de nourriture qui, combinée à un facteur de concentration de 495, donne une valeur de référence spécifique dans l'eau de $0,02 \mu\text{g L}^{-1}$ (Miljøministeriet, 2011).

2.5 VALEUR DE REFERENCE SPECIFIQUE VISANT LA PROTECTION DE LA SANTE HUMAINE AU REGARD DE LA CONSOMMATION D'EAU DE BOISSON ($QS_{\text{DW, HH}}$)

Pour les eaux de boisson, les recommandations européennes (EC, 2011) conseillent de se référer prioritairement aux valeurs guides préconisées en Europe ou par l'OMS lorsqu'elles existent (rapport IRSN-SERIS 2013-023), ce qui est le cas pour l'uranium (rapport IRSN-SERIS 2013-030). L'OMS a ainsi recommandé jusqu'en 2012 une concentration guide dans les eaux destinées à la consommation humaine de $15 \mu\text{g L}^{-1}$, aujourd'hui portée à $30 \mu\text{g L}^{-1}$ (OMS, 2012) à la lumière d'études épidémiologiques.

Cette révision de la valeur guide conseillée par l'OMS n'est à ce jour pas reprise au plan national. La seule recommandation publiée en France date de 2010 : l'ANSES (ex-AFFSA), calquant sa position sur l'avis initial de l'OMS et celui de l'EFSA (2009), a également retenu la valeur de $15 \mu\text{g L}^{-1}$ (AFFSA, 2010). Cette proposition d'exigence de qualité de l'eau formulée par l'AFSSA a été obtenue en appliquant à la Dose Minimale avec Effet Nocif Observé - DMENO- obtenue par Gilman *et al.* (1998 ; $0,06 \text{ mg kg}^{-1}$ poids corporel j^{-1} , administré dans l'eau de boisson de rats adultes), une exposition hydrique représentant 80% de l'exposition totale, associée à une consommation d'eau de 2 L j^{-1} pour un adulte de 60 kg (OMS, 2004).

3 DETERMINATION DE LA VGE ET APPLICATION

3.1 DETERMINATION DE LA VGE

Le Tableau 1 synthétise les différentes valeurs retenues pour la détermination de la VGE pour l'uranium. La valeur la plus faible est le $QS_{w,eco}$ ($0,3 \mu\text{g L}^{-1}$), et il est donc possible de déterminer une VGE égale à $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$. On peut noter que cette valeur est obtenue en l'absence de données suffisantes pour évaluer les deux QS concernant l'empoisonnement secondaire par ingestion de nourriture (par les prédateurs et l'homme). L'acquisition de nouvelles connaissances sur ces deux critères pourrait donc potentiellement mener à une réévaluation de la VGE.

Tableau 1 : synthèse des valeurs de QS retenues pour la détermination de la VGE pour l'uranium

Compartiment (récepteur)	critère	Valeur retenue ($\mu\text{g L}^{-1}$ dans l'eau)
Eau (organismes pélagiques)	$QS_{w,eco}$	0,3
Sédiment (organismes benthiques)	$QS_{sed,eco}$	2,0
Biote (prédateurs)	$QS_{biota,secpois,w}$	nd
Eau (homme)	$QS_{dw,hh}$	15,0 (Anses, 2010) 30,0 (OMS, 2012)
Biote (homme)	$QS_{biota, hh food}$	nd

3.2 APPLICATION DE LA VGE

Pour une application opérationnelle de la VGE, la démarche suivante est proposée :

1. Considération du fond géochimique

Si le fond géochimique est supérieur à $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$, l'approche en « risque ajouté »⁴ est adoptée (la VGE est alors : concentration du fond géochimique + $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$). Dans le cas contraire, ou si le fond géochimique n'est pas connu, une approche en « risque total » est adoptée (la VGE est alors de $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$ sans considérer le fond géochimique).

2. Comparaison de la concentration dissoute moyenne annuelle à la VGE pour l'évaluation de l'état chimique et écologique d'une masse d'eau

Si la concentration dissoute moyenne annuelle dans l'eau est inférieure à la VGE, l'état chimique et écologique est jugé satisfaisant.

⁴ au regard des concentrations généralement constatées dans les milieux en l'absence de modification anthropique, il est probable que dans la majorité des cas l'approche en « risque ajouté » s'applique.

L'application de la VGE dépend principalement de deux éléments : (i) la connaissance du fond géochimique, ainsi que de l'incertitude associée et (ii) l'existence de méthodes analytiques de mesure présentant à la fois des limites de quantification de l'uranium et une précision de mesure suffisantes pour permettre une comparaison du fond géochimique et des concentrations d'exposition avec la VGE.

L'estimation de la concentration du fond géochimique est basée sur la meilleure information disponible relative à la concentration dans le même type de milieu naturel soumis à une faible pression anthropique. Pour autant, il n'existe pas à ce jour de méthode consensuelle pour déterminer les valeurs de fond géochimique (rapport **IRSN-SERIS 2012-024**) : la détermination numérique d'un fond géochimique peut être réalisée par diverses méthodes en fonction de la taille et de la qualité du jeu de données, en conservant ou en éliminant les valeurs extrêmes, en incluant ou non les valeurs inférieures aux limites de détection... Par ailleurs, la notion d'échelle spatiale est essentielle : seule une détermination à échelle locale possède une signification géochimique utile pour l'évaluation du risque (dans le cadre de la DCE, le fond géochimique est par exemple défini par hydroécocorégion). Une fois l'échelle de travail définie, l'établissement de concentrations de fond géochimique peut se faire selon deux directions : l'acquisition de données issues d'un échantillonnage dédié ou l'utilisation de mesures préalablement collectées. Cependant, outre le fait que l'échantillonnage dédié repose sur l'identification de zones vierges de toute influence humaine, ce qui apparaît rare en France, l'existence de données issues de la surveillance tend à privilégier dans un premier temps l'exploration de cette piste, avant d'engager un processus long et coûteux d'acquisition de mesures spécifiques.

A titre d'exemple, le travail réalisé en 2009 (cf. rapport **IRSN-SECRE 2009-015**) sur un jeu de données réunies par l'IRSN (résultats de surveillance de l'environnement au cours de la période de janvier 2005 à juillet 2009), a permis d'estimer la concentration moyenne en uranium entre 0,25 et 1 $\mu\text{g L}^{-1}$ dans les eaux hors influence minière, et de l'ordre de 3 $\mu\text{g L}^{-1}$, sous influence minière.

Les limites de quantification de l'uranium les plus faibles obtenues par ICP-MS (inférieures à 0,01 $\mu\text{g L}^{-1}$) sont largement compatibles, à la fois avec les gammes de concentrations ciblées par la VGE et avec la sensibilité nécessaire pour quantifier le fond géochimique. Cette méthode rapide est de plus en plus répandue, avec des coûts associés devenus accessibles ces dernières années pour la métrologie de routine. Par conséquent, l'ICP-MS est la méthode à privilégier pour la mesure de l'uranium dans l'eau (en focalisant sur la mesure de la fraction dissoute filtrée à $< 0,45 \mu\text{m}$).

Notons cependant que la sensibilité de l'analyse ne résout pas le problème de la variabilité des mesures, inhérente au plan d'échantillonnage, aux fluctuations temporelles et aux incertitudes de mesure. En effet, si l'on considère par exemple un fond géochimique de l'ordre de 1 $\mu\text{g L}^{-1}$, l'approche en « risque ajouté » est alors adoptée et la conclusion sur l'état satisfaisant ou non de l'état chimique et écologique d'une masse d'eau reposera sur la capacité de déterminer une différence entre 1,0 et 1,3 $\mu\text{g L}^{-1}$ en concentration dissoute moyenne annuelle. Pour ce faire, un plan d'échantillonnage conséquent, associé à un traitement de données avancé (par ex. un traitement probabiliste de la distribution des concentrations de fond géochimique et d'exposition), seront probablement nécessaires.

3.3 COHERENCE AVEC LE CRITERE DE RADIOPROTECTION DE L'ENVIRONNEMENT APPLIQUE A L'EAU ET AUX SEDIMENTS

Le rapport IRSN-SERIS 2011-028 a étudié la cohérence du critère de radioprotection de l'environnement, exprimé pour l'exposition chronique par un débit de dose (PNEDR, en $\mu\text{Gy h}^{-1}$) avec la VGE de l'uranium. Cet exercice est compliqué par le fait que l'uranium est naturellement un mélange des trois isotopes radioactifs de masse 234, 235 et 238. En outre, les isotopes 235 et 238 sont à l'origine de chaînes de filiation complexes dont tous les radionucléides concourent à l'exposition radiologique des organismes. A l'opposé, la prise en compte des descendants de l'uranium n'est pas pertinente du point de vue de la chimiotoxicité (les concentrations massiques générées par le processus de filiation radioactive sont très faibles, et la chimiotoxicité de certains éléments ainsi générés est au plus du même ordre que celle de l'uranium).

Le PNEDR de $10 \mu\text{Gy h}^{-1}$ consensuel au plan européen (Garnier-Laplace *et al.*, 2006 ; Beresford *et al.*, 2007 ; Andersson *et al.*, 2008) est applicable en incrément du débit de dose dû au fond géochimique pour un écosystème générique, quelle que soit sa nature (ici, un écosystème aquatique continental). La protection de l'écosystème est considérée comme assurée lorsque les débits de dose d'exposition déterminés pour des organismes de référence représentatifs de l'écosystème sont tous inférieurs au PNEDR. Les concentrations en uranium dissous correspondant au PNEDR ont alors été calculées. L'étude a montré que globalement, la protection radiologique est assurée lorsque les concentrations en uranium dissous ne dépassent pas $4,6 \mu\text{g L}^{-1}$. Cette valeur montre donc qu'une VGE de $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$ est conservative vis-à-vis du risque radiologique pour les organismes aquatiques.

Cependant, pour réaliser ces calculs, des nombreuses hypothèses ont été nécessaires, alors qu'il est probable que leur validité n'est pas toujours assurée selon les masses d'eau considérées (équilibre entre les différentes composantes abiotiques et biotiques de l'environnement, prise en compte des isotopes de l'uranium et de leurs descendants). Ces calculs sont de ce fait entachés de fortes incertitudes, limitant leur caractère opérationnel. Dans l'état actuel des connaissances, l'approche la plus raisonnable consiste à s'assurer que les débits de dose auxquels les organismes sont exposés du fait des concentrations présentes de l'uranium et de ses descendants ne dépassent pas le PNEDR, ce qui requiert la détermination la plus exhaustive possible des différents radionucléides présents.

4 DETERMINATION DE QS_{W,ECO} CONDITIONNELS ET APPLICATION

Les approches permettant la prise en compte de la biodisponibilité des métaux, par exemple BLM (Biotic Ligand Model), font aujourd'hui consensus dans la communauté scientifique mais ne sont pleinement développées que pour quelques éléments (Cu, Ni et Cd essentiellement). Même si les connaissances actuelles ne sont encore que partielles pour l'uranium, il est reconnu aujourd'hui que sa toxicité est fonction des caractéristiques physico-chimiques du milieu d'exposition, qui gouvernent sa spéciation chimique et ainsi sa biodisponibilité. Sur la base de l'état actuel des connaissances (rapport IRSN-SERIS 2014-028), l'IRSN propose de considérer quatre espèces chimiques d'uranium dissous comme biodisponibles (UO_2^{2+} , $UO_2(OH)^+$, $UO_2(OH)_2$ et UO_2CO_3). L'uranium présente une spéciation chimique complexe extrêmement sensible aux conditions physico-chimiques du milieu, et ce particulièrement dans la gamme de valeurs caractéristiques des eaux douces pour les paramètres influençant cette spéciation. En première approche, il a été proposé de considérer uniquement les effets des quatre principaux paramètres physico-chimiques (matière organique dissoute, pH, alcalinité, dureté) qui conditionnent la spéciation de l'uranium, et donc la fraction d'espèces d'uranium biodisponibles dans le milieu. D'autres facteurs influençant la biodisponibilité de l'U comme l'effet compétiteur des autres cations (Ca^{2+} , Mg^{2+} , H^+ ...) n'ont pas été considérés, du fait de manque de connaissances et de consensus scientifique à cet égard.

Ainsi, l'objectif a été de déterminer des valeurs de $QS_{w,eco}$ conditionnels aux caractéristiques physico-chimiques des eaux douces métropolitaines (pH, alcalinité, dureté et teneur en carbone organique dissous (COD)). Ce travail, initié en 2010 (rapport IRSN-SECRE 2010-038) a été finalisé en 2014 par la proposition d'un arbre de détermination simplifié pour le choix des $QS_{w,eco}$ conditionnels (rapport IRSN-SERIS 2014-028).

4.1.1 METHODOLOGIE DE DETERMINATION DES QS_{W,ECO} CONDITIONNELS

La méthodologie adoptée a consisté tout d'abord à déterminer les quantités d'uranium biodisponible attendues dans des eaux ayant des caractéristiques physico-chimiques contrastées, mais représentatives des masses d'eaux continentales françaises. Ainsi, un jeu de données représentatives des eaux douces de surface françaises a été considéré (Atlas Géochimique Européen FOREGS ; Salminen *et al.*, 2005), qui recense l'ensemble des caractéristiques physico-chimiques de 119 eaux de rivières françaises de 1^{er} ordre réparties sur l'ensemble du territoire métropolitain. Pour chacune de ces eaux, il s'agit de déterminer la concentration d'uranium dissous maximale (U_{max}) correspondant à une concentration en espèces d'uranium biodisponibles (U_{bio} , égale à la somme des 4 espèces considérées comme biodisponibles) au plus égale à l'AA- $QS_{w,eco}$ de 0,3 $\mu g L^{-1}$. Cette détermination a été effectuée de façon théorique⁵ par un calcul de spéciation chimique de l'uranium dans ces différentes eaux.

⁵ code de calcul de spéciation Visual Minteq (VMinteq v3.0 (<http://www2.lwr.kth.se/English/OurSoftware/vminteq/index.html>) avec sa base de données incluant la complexation avec la matière organique dissoute et les complexes ternaires uranium-alcalinoterreux-carbonates (rapport IRSN-SERIS 2014-048).

Ces données ont été utilisées pour déterminer par une analyse statistique, dite « d'arbre de régression », des classes conservatives de $QS_{w,eco}$ conditionnels, délimitées par les valeurs des paramètres physico-chimiques influents (pH, alcalinité et COD). Une attention particulière a été donnée à la prise en compte de la matière organique dissoute pour la détermination de $QS_{w,eco}$ conditionnels, ce paramètre étant particulièrement influant sur la spéciation chimique de l'uranium dans les eaux (rapports IRSN-SERIS 2012-035 et 2013-041).

Le formalisme adopté a été celui d'un arbre de détermination, à la fois robuste et simple d'utilisation. Les travaux réalisés en 2014 (rapport IRSN-SERIS 2014-028) ont eu pour but de vérifier la cohérence des classes ainsi proposées avec les données d'écotoxicité disponibles. Enfin, un jeu de données indépendant de celui ayant servi à construire l'arbre de détermination a été utilisé afin d'évaluer la validité et la robustesse des classes d'eaux identifiées et des $QS_{w,eco}$ conditionnels associées à ces classes.

4.1.2 $QS_{w,ECO}$ CONDITIONNELS

La synthèse de l'ensemble des résultats s'est traduite par la construction d'un arbre de détermination, qui définit les $QS_{w,eco}$ conditionnels associés à chaque classe d'eau (Figure 1). On notera que la dureté n'apparaît plus de façon formelle dans l'identification des classes, ce paramètre étant corrélé à l'alcalinité.

Ainsi, quatre classes d'eau sont différenciées par leurs valeurs d'alcalinité, pH et COD. La valeur de $QS_{w,eco}$ conditionnel est de $30 \mu\text{g L}^{-1}$ pour une eau d'alcalinité supérieure à $75 \text{ mg L}^{-1} \text{ HCO}_3^-$. Si l'alcalinité est inférieure ou égale à cette valeur, un pH supérieur à 7,5 définira un $QS_{w,eco}$ de $10 \mu\text{g L}^{-1}$. Pour un pH inférieur ou égal à cette valeur, on considérera alors la concentration en carbone organique dissous : au-dessus de 6 mg L^{-1} de COD, le $QS_{w,eco}$ sera de $3 \mu\text{g L}^{-1}$, et dans le cas contraire il sera de $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$.

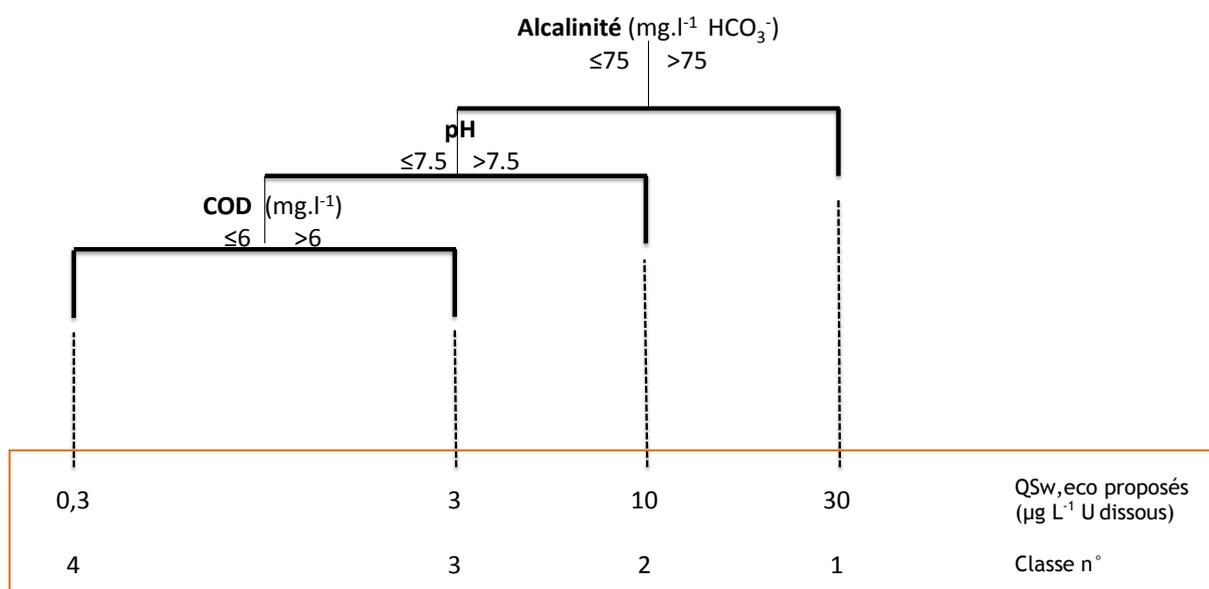


Figure 1 : Arbre de détermination des $QS_{w,eco}$ de l'uranium conditionnels à différents domaines physico-chimiques.

4.1.3 DOMAINE D'APPLICATION DES $QS_{w,ECO}$ CONDITIONNELS

Les différentes étapes de validation des classes conditionnant les $QS_{w,ECO}$ associés ont montré que cet arbre pouvait s'utiliser pour des eaux dont les caractéristiques physico-chimiques sont comprises dans les gammes suivantes :

- $5,5 \leq \text{pH} \leq 8,8$
- $1 \text{ mg L}^{-1} \leq \text{alcalinité} \leq 400 \text{ mg L}^{-1} (\text{HCO}_3^-)$
- $0 \text{ mg L}^{-1} \leq \text{COD} \leq 70 \text{ mg L}^{-1}$
- $5 \text{ mg L}^{-1} \leq \text{dureté} \leq 1000 \text{ mg L}^{-1} (\text{CaCO}_3)$

Les AA- $QS_{w,ECO}$ et MAC- $QS_{w,ECO}$ étant très proches (0,3 et 0,4 $\mu\text{g L}^{-1}$), l'utilisation de l'arbre de détermination peut s'envisager de la même manière en conditions chronique et aiguë. Pour toutes les eaux ayant des caractéristiques physico-chimiques en dehors de ce domaine d'application, il convient d'utiliser la valeur du $QS_{w,ECO}$ générique non corrigée de la biodisponibilité, soit 0,3 $\mu\text{g L}^{-1}$.

Notons enfin que l'arbre de détermination des $QS_{w,ECO}$ conditionnels de l'uranium en eau douce repose sur les connaissances actuelles en matière de spéciation et de biodisponibilité des différentes espèces chimiques de l'uranium. Il est donc sujet à modification en réponse à l'évolution prévisible de la compréhension et de la mesure de la biodisponibilité de cet élément.

4.1.4 APPLICATION DES $QS_{w,ECO}$ DANS UNE APPROCHE GRADUEE

Pour une application opérationnelle des valeurs de références spécifiques pour l'uranium dans l'eau ($QS_{w,ECO}$ génériques, et conditionnels), l'approche graduée suivante est proposée (déclinée ci-dessous pour la situation d'exposition chronique avec la valeur de l'AA- $QS_{w,ECO}$ de 0,3 $\mu\text{g L}^{-1}$ et la considération d'une concentration dissoute moyenne annuelle) :

1. Considération du fond géochimique

Si le fond géochimique est supérieur à 0,3 $\mu\text{g L}^{-1}$, l'approche en Risque Ajouté est adoptée (le $QS_{w,ECO}$ est alors : concentration du fond géochimique + 0,3 $\mu\text{g L}^{-1}$). Dans le cas contraire, ou si le fond géochimique n'est pas connu, une approche en Risque Total est adoptée (le $QS_{w,ECO}$ est alors de 0,3 $\mu\text{g L}^{-1}$).

2. Comparaison de la concentration dissoute moyenne annuelle au $QS_{w,ECO}$ générique

Si la concentration dissoute moyenne annuelle est inférieure au $QS_{w,ECO}$, la qualité de l'eau est jugée satisfaisante. Si ce n'est pas le cas, la biodisponibilité peut être considérée.

3. Comparaison de la concentration dissoute moyenne annuelle au $QS_{w,ECO}$ conditionnel au domaine physico-chimique considéré (0,3 à 30 $\mu\text{g L}^{-1}$, cf. Figure 1).

Si la concentration dissoute moyenne annuelle est inférieure au $QS_{w,ECO}$ conditionnel du domaine physico-chimique considéré, la qualité de l'eau est jugée satisfaisante. Si ce n'est pas le cas, il peut être envisagé de raffiner la prise en compte la biodisponibilité par des calculs de spéciation ou des mesures spécifiques appropriées. A cette étape, la présence d'autres complexants inorganiques (ex. phosphates, sulfates) peut notamment être prise en compte pour le calcul, en apportant la justification scientifique de la non-biodisponibilité des complexes de l'uranium formés.

Pour l'application des $QS_{w,eco}$, il est nécessaire de disposer de mesures d'uranium dans la fraction dissoute des eaux ($<0.45\mu m$) et, pour les $QS_{w,eco}$ conditionnels, des paramètres physico-chimiques du milieu (pH, alcalinité, dureté, COD) mesurés en un même lieu et même temps que les concentrations d'uranium. L'extrapolation (temporelle ou géographique) des données manquantes n'est pas recommandée, du fait de la sensibilité de la spéciation de l'uranium aux conditions physico-chimiques. Ainsi, la surveillance telle que pratiquée habituellement, notamment en termes de paramètres mesurés et de fréquence des prélèvements et des analyses, nécessite d'être adaptée en conséquence. Par ailleurs, un regard critique doit être conservé sur les méthodes utilisées pour la mesure des paramètres physico-chimiques (précision, sensibilité). Dans la mesure du possible, l'utilisation de méthodes normalisées et éprouvées est recommandée.

Enfin, rappelons que si les classes et les $QS_{w,eco}$ associés ont été validés dans une certaine mesure, plusieurs limites doivent être rappelées quant à leur utilisation potentielle :

- Le domaine d'application des $QS_{w,eco}$ conditionnels se limite à une utilisation pour les milieux aquatiques continentaux, et ne peut s'envisager pour la surveillance des rejets.
- Les $QS_{w,eco}$ conditionnels ne concernent que les communautés pélagiques : les cas de l'exposition des prédateurs par l'empoisonnement secondaire et des communautés benthiques exposées via le compartiment sédimentaire doivent être considérés de manière indépendante.

5 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les travaux réalisés par l'IRSN depuis 2009 ont permis de déterminer différents critères de protection des écosystèmes aquatiques continentaux vis-à-vis de l'uranium. Tout d'abord, une valeur guide environnementale (VGE = $0,3 \mu\text{g L}^{-1}$ à utiliser en incrément du bruit de fond) a été retenue, visant la protection générique de la santé humaine et l'environnement. Cette valeur a été déterminée selon les recommandations du TGD-EQS (EC, 2011) pour l'évaluation de l'état écologique et de l'état chimique des masses d'eau. Par ailleurs, les travaux de l'IRSN ont confirmé que cette VGE est également conservative vis-à-vis du critère de protection radiologique des écosystèmes de $10 \mu\text{Gy h}^{-1}$.

Par ailleurs, des valeurs de référence spécifiques applicables dans l'eau visant la protection des organismes pélagiques d'eau douce ont été déterminées pour une utilisation en évaluation des risques. La Concentration Moyenne Annuelle applicable pour une situation d'exposition chronique ($\text{AA-QS}_{w,eco} = 0,3 \mu\text{g L}^{-1}$) est très proche de la Concentration Maximale Admissible applicable en situation aiguë ($\text{MAC-QS}_{w,eco} = 0,4 \mu\text{g.L}^{-1}$). De même que pour la VGE, ces valeurs s'appliquent en incrément du fond géochimique selon l'approche en « risque ajouté », sauf si le fond géochimique est inférieur à ces valeurs, auquel cas l'approche en « risque total » s'applique.

Enfin, les connaissances actuelles sur la biodisponibilité de l'uranium ont permis d'établir une arbre de détermination (Figure 1) définissant quatre classes physico-chimiques, pour lesquels des $\text{QS}_{w,eco}$ conditionnels de $0,3$ à $30 \mu\text{g L}^{-1}$ ont été définis.

A l'issue de ce travail, un certain nombre de limites et de perspectives peuvent être notées.

1. quantification du fond géochimique

Un travail de recueil, de mise en cohérence et de traitement des données disponibles a débuté à l'IRSN pour les aspects radioactifs, dans le cadre d'un Groupe de Travail « Fond géochimique » qui a pour objectif final la caractérisation de valeurs de fond géochimique pour l'uranium à des échelles géographiques appropriées. Une ébauche du travail à réaliser a préalablement été conduite sur un jeu de données réunies par l'IRSN (1898 résultats de la surveillance de l'environnement obtenus par l'IRSN au cours de la période allant de janvier 2005 à juillet 2009), permettant d'illustrer la démarche méthodologique possible (cf. rapport IRSN-SECRE 2009-015). La présence de nombreux résultats de mesure inférieurs à la limite de quantification a notamment conduit à mettre en œuvre des techniques statistiques spécifiques pour définir les concentrations moyennes en uranium dans les eaux de cours d'eau et leurs gammes de variation.

Par ailleurs, les travaux réalisés par l'Irstea et l'Onema sur l'identification des fonds géochimiques pour les métaux dissous dans les eaux de surface continentales (Chandersis et al., 2013) ont permis de proposer une méthodologie de quantification des fonds géochimiques tant sur le plan de la stratégie d'échantillonnage que sur le plan analytique, en valorisant au mieux les connaissances acquises à ce jour et en conservant un objectif de faisabilité opérationnelle pour les gestionnaires. Son application pour l'uranium pourrait être étudiée.

En particulier, la probable proximité de la VGE, et des valeurs de référence spécifiques applicables dans l'eau, avec le fond géochimique dans les cours d'eau français pourra nécessiter d'adopter une stratégie

d'échantillonnage adaptée, d'un point de vue de la fréquence des mesures effectuées et de leur représentativité géographique.

2. Confirmation du caractère conservatif de la VGE telle que dérivée à partir du $QS_{w,eco}$

Dans l'état actuel des connaissances, le $QS_{w,eco}$ reste la valeur limitante pour la détermination de la VGE. Cependant, les autres QS pourraient, selon les hypothèses considérées, devenir limitants. C'est en particulier le cas pour deux QS :

- Le $QS_{sed,eco}$ de 4 mg kg^{-1} (équivalent à $2 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ dans l'eau) peut devenir le QS limitant pour la détermination de la VGE si l'on considère un sédiment présentant un coefficient de partage supérieur à la valeur retenue dans le présent travail (valeur de 1000, valeur maximale retenue par l'AIEA, 2010). En effet, la concentration limite de $0,3 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ dans l'eau n'est plus protectrice pour les organismes benthiques dès lors que le K_d dépasse une valeur de 6666. Ce point pourrait être complété par une analyse de la variabilité des K_d de l'uranium dans les sédiments des rivières françaises à partir de l'ensemble de l'information disponible, et de la prise en compte des caractéristiques physico-chimiques du sédiment susceptibles de modifier la biodisponibilité de l'uranium (ex. taux d'argiles et carbone organique).
- Bien que la qualité et la quantité des données disponibles sont généralement considérées comme insuffisantes pour dériver un $QS_{w,biota,secpois}$, le Danemark a retenu en 2011 un $QS_{w,biota,secpois}$ égal à $0,015 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ remettant potentiellement en cause le choix de retenir le $QS_{w,eco}$. Seule l'acquisition de données complémentaires, que ce soit par le biais de tests d'écotoxicité ou par la mise en œuvre d'approches de modélisation, est susceptible de pallier la faiblesse du jeu de données.

L'étude réalisée en 2009 (rapport IRSN-SECRE 2009-015) avait permis de recenser un ensemble de valeurs guides proposées dans le monde, variant de $0,5$ à $19 \text{ } \mu\text{g L}^{-1}$ pour ce qui concerne la protection d'un écosystème d'eau douce. Cet état de l'art, en comparaison des valeurs retenues dans le présent travail, pourrait être complété.

Enfin, la validation définitive de la robustesse de la VGE ne sera acquise que par la confrontation avec une appréciation de la qualité écologique des écosystèmes sous influence de rejets uranifères (avec la mesure d'indicateurs de biodiversité tels que l'IBGN, l'IBD ou tout autre indice permettant d'évaluer l'état écologique des milieux). Cette étape est indispensable lorsque l'application de la VGE et/ou des QS afférentes ne permettraient pas de conclure à une qualité satisfaisante du milieu (ultime étape de la démarche graduée). Un état de l'art sur les données déjà disponibles d'indicateurs de qualité des milieux, et/ou une revue des méthodologies recommandées pour la détermination de l'état écologique pourrait être proposé.

3. Compatibilité des valeurs de référence chimiotoxiques et radiologiques dans les sédiments

Les travaux réalisés en 2011 (rapport IRSN-SECRE 2011-028) avaient permis de vérifier la cohérence du PNEDR ($10 \text{ } \mu\text{Gy h}^{-1}$) et du $QS_{w,eco}$ générique ou conditionnels alors retenus, avec une valeur réglementaire de gestion des sédiments mise en place par arrêté préfectoral dans le Limousin (article 8 du décret 90-222, fixant une valeur limite à $3700 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$ dans les sédiments). Si la VGE reste compatible avec le critère de protection

radiologique, le $QS_{sed,eco}$ pourrait ne plus être conservatif dans certains cas. Une ré-évaluation de la cohérence du $QS_{sed,eco}$ vis à vis de la PNEDR pourrait être envisagée.

4. Valider les hypothèses de biodisponibilité

De manière générale, le développement et l'acceptation d'approches prenant en compte la biodisponibilité des métaux représentent une avancée indéniable, qui reflète le progrès des connaissances sur la compréhension des mécanismes physiologiques contrôlant la prise en charge des métaux par les organismes et la toxicité associée. Cependant, d'un point de vue conceptuel, ces modèles souffrent également d'incertitudes et sont sous-tendus par un certain nombre d'hypothèses simplificatrices. Plus spécifiquement dans le cas de l'uranium :

- les espèces biodisponibles de l'uranium considérées ont été sélectionnées à partir d'un nombre limité de résultats de tests de toxicité en laboratoire, conduits principalement en condition d'exposition aiguë et restreints à quelques espèces ;
- les espèces biodisponibles de l'uranium considérées ont été déterminées en laboratoire pour des gammes limitées de variation de pH, de carbone organique dissous, de dureté et d'alcalinité, ne couvrant pas la diversité des conditions physico-chimiques rencontrées dans les eaux françaises ;
- l'effet des changements physico-chimiques du milieu (pH, alcalinité, dureté et COD) devrait être considérée non seulement sur la biodisponibilité dans le milieu, mais aussi sur la physiologie des organismes (par ex. Lavoie *et al.* (2014) ont montré qu'un pH acide est susceptible de sensibiliser les algues à l'uranium) ;
- de même que pour l'eau, la prise en compte de la spéciation chimique et la biodisponibilité de l'uranium dans le sédiment pourraient permettre de normaliser les données d'écotoxicité au regard d'une situation de référence ou de conditions locales, et de proposer des $QS_{sed,eco}$ spécifiques aux caractéristiques physico-chimiques des sédiments.

Sur ces différentes limites, les perspectives de travail sont de plus long terme. L'effort expérimental à mener serait en effet conséquent, nécessitant par exemple la validation des hypothèses d'espèces biodisponibles de l'uranium par le développement de modèles BLM complets pour une exposition chronique et pour au moins trois espèces (producteur primaire, invertébré, vertébré).

A plus court terme, et pour information, le développement d'un BLM complet pour l'uranium est en cours dans le cadre du réseau d'excellence en radioécologie STAR, concernant la toxicité aiguë de l'uranium sur trois espèces aquatiques (plantes, daphnies, poisson). Dans le cadre de STAR, l'IRSN finalisera en 2015 l'étude menée sur la daphnie.

Enfin, la détermination d'un $QS_{w,eco}$ biodisponible pourra très certainement être envisagé dans un avenir proche - dès que le jeu de données d'écotoxicité sera suffisant pour autoriser le traitement SSD des données (en remplacement de la méthode des facteurs d'extrapolation) - sur la base des fractions biodisponibles calculées dans ces bioessais.

6 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

6.1 LISTE CHRONOLOGIQUE DES RAPPORTS DE L'IRSN RELATIFS A LA DETERMINATION DE LA VGE DE L'URANIUM EN EAU DOUCE

- 2009
- **Rapport IRSN/DEI/SECRE/2009-015** - Vers la proposition d'une norme de qualité environnementale pour l'uranium en eau douce, 70 pages. **Karine Beaugelin-Seiller, Jacqueline Garnier-Laplace, Rodolphe Gilbin.**
- 2010
- **Rapport IRSN/DEI/SECRE/2010-038** - Proposition de valeurs de PNEC chronique et aiguë pour l'uranium : valeurs génériques et conditionnelles aux domaines physico-chimiques des eaux douces considérées, 69 pages. **Karine Beaugelin-Seiller, Laureline Février, Jacqueline Garnier-Laplace, Rodolphe Gilbin.**
- 2011
- **Rapport IRSN/DEI/SECRE/2011-028** - Intégration du critère de radioprotection de l'environnement dans la NQE de l'uranium : application à l'eau et aux sédiments, 44 pages. **Karine Beaugelin-Seiller.**
- 2012
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-030** - Évaluation du risque écologique chimiotoxique associé aux substances autres que l'uranium présentes dans les effluents liquides des anciens sites miniers uranifères, 31 pages. **Béatrice Gagnaire.**
 - **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-035** - Prise en compte de la matière organique dissoute pour la détermination de PNEC uranium conditionnelles aux domaines physico-chimiques des eaux douces, analyse de sensibilité, 48 pages. **Laureline Février, Frédéric Coppin.**
 - **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-029** - Écotoxicité de l'uranium associé au sédiment pour les écosystèmes d'eau douce : état de l'art et premiers éléments pour la détermination de la norme de qualité spécifique ($QS_{\text{sédiment}}$), 23 pages. **Olivier Simon.**
 - **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2012-024** - Bruit de fond géochimique de l'uranium dans les eaux de rivière de métropole - Approche méthodologique, 48 pages. **Karine Beaugelin-Seiller.**
- 2013
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-023** - Évolutions récentes des méthodes de détermination des critères de protection des écosystèmes aquatiques. Conséquences pour l'uranium, 30 p. **Karine Beaugelin-Seiller.**
 - **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-030** - Empoisonnement secondaire par l'uranium en milieu aquatique continental. État des connaissances, 24 p. **Karine Beaugelin-Seiller.**
 - **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-041** - Intégration opérationnelle de la matière organique dans la détermination des valeurs génériques et conditionnelles des $PNEC_{\text{eau}}$ de l'uranium. Application au domaine physico-chimique des eaux douces françaises, 83 p. **Laureline Février, Karine Beaugelin-Seiller, Rodolphe Gilbin.**
 - **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-040** - Acquisition de nouvelles valeurs d'écotoxicité chronique en support de la détermination d'une norme de qualité spécifique du sédiment ($QS_{\text{sédiment}}$) pour l'uranium, 81 p. **Olivier Simon, Rodolphe Gilbin.**
- 2014
- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2014-028** - Proposition de valeurs de $PNEC_{\text{eau}}$ de l'uranium conditionnelles à des domaines physico-chimiques représentatifs des eaux douces françaises, 104 p. **Laureline Février, Rodolphe Gilbin.**

- **Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2014-030** - Résultats de tests d'écotoxicité en support de la détermination d'une norme de qualité spécifique du sédiment ($QS_{\text{sédiment}}$) pour l'uranium, 20 p. Olivier Simon, Loïc Carasco, Rodolphe Gilbin, Karine Beaugelin-Seiller

6.2 REFERENCES EXTERNES

- AFSSA (Agence Française de Sécurité Sanitaire, 2010 - devenue ANSES - Agence Nationale de Sécurité Sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail). Avis de l'Agence française de sécurité sanitaire des aliments relatif à la détermination d'une exigence de qualité en uranium pondéral dans les eaux destinées à la consommation humaine. Saisine n°2008-SA-0380. Disponible à l'adresse : <http://2013.anses.fr/fr/content/avis-de-l%E2%80%99agence-fran%C3%A7aise-de-s%C3%A9curit%C3%A9-sanitaire-des-aliments-relatif-%C3%A0-la-d%C3%A9termination-d-3> (page consultée le 4 avril 2013).
- AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique, 2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Reports Series n° 472, AIEA, Vienne.
- AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique, 2014). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer to Wildlife. Technical Reports Series 479, AIEA, Vienne.
- Andersson P., Beaugelin-Seiller K., Beresford N. A., Coplestone D., Della Vedova C., Garnier-Laplace J., Howard B.J., Howe P., Oughton D.H., Wells C., Whitehouse P. (2008). Numerical benchmarks for protecting biota from radiation in the environment: proposed levels, underlying reasoning and recommendations. Deliverable 5 to the Project "PROTECT" Protection of the Environment from Ionising Radiation in a Regulatory Context, contract No. FI6R-036425. Disponible à l'adresse : <https://wiki.ceh.ac.uk/display/rpemain/Deliverable+reports> (page consultée le 21 juin 2011).
- ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry, 1999/2013). Toxicological Profile for Uranium. U.S. Department of Health and Human Services. Public Health Service. Disponible à l'adresse (mise à jour en février 2013) : <http://www.atsdr.cdc.gov/ToxProfiles/tp.asp?id=440&tid=77> (page consultée le 5 août 2013).
- Beresford N., Brown J., Coplestone D., Garnier-Laplace J., Howard B.J., Larsson C-M., Oughton O., Pröhl G., Zinger I. (eds.) (2007). D-ERICA: An INTEGRATED APPROACH to the assessment and management of environmental risks from ionising radiation. Description of purpose, methodology and application. Final deliverable to the Project "ERICA" Environmental Risk from Ionising Contaminants: Assessment and Management, contract No. FI6R-CT-2004- 508847. Disponible à l'adresse : <https://wiki.ceh.ac.uk/display/rpemain/ERICA+reports> (page consultée le 21 juin 2011).
- Chandesris A., Canal J., Bougon N., Coquery M. (2013). Détermination du fond géochimique pour les métaux dissous dans les eaux continentales. Rapport final. Irstea. 65 p
- Domingo J.L., Paternain J.L., Llobet J.M., Corbella J. (1989). The developmental toxicity of uranium in mice. *Toxicology*, 55:143-152.
- EC (European Commission, 2003). Technical guidance document in support of Commission Directive 93/67/EEC on risk assessment for new notified substances and Commission Regulation (EC) No 1488/94 on risk assessment for existing substances, Directive 98/8/EC of the European Parliament and of the Council

- concerning the placing of biocidal products on the market. Part II. Luxembourg, Office for Official Publication of the European Communities.
- EC (European Commission, 2011). Technical Guidance For Deriving Environmental Quality Standards (TGD-EQS). Guidance Document n°27. Common Implementation Strategy for the Water Framework Directive. Technical report-2011-055, 203 p.
- EFSA (European Food Safety Authority, 2009). Scientific Opinion of the Panel on Contaminants in the Food Chain on a request from German Federal Institute for Risk Assessment (BfR) on uranium in foodstuff, in particular mineral water. The EFSA Journal 1018, 1-59. Disponible à l'adresse : <http://www.efsa.europa.eu/fr/efsajournal/pub/1018.htm> (page consultée le 2 août 2013).
- Garnier-Laplace, J., Della-Vedova, C., Gilbin, R., Copplestone, D., Hingston, J., Ciffroy, P. (2006). First derivation of predicted-no-effect values for freshwater and terrestrial ecosystems exposed to radioactive substances. Environ. Sci. Technol., 40: 6498-6505.
- Gilman A.P., Villeneuve D.C., Secours V.E., Yagminas A.P., Tracy B.L., Quinn J.M., Valli V.E., Willes R.J., Moss M.A. (1998). Uranyl nitrate: 28-day and 91-day toxicity studies in the Sprague-Dawley rat. Toxicol. Sci. 41:117-128.
- INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, 2011). Méthodologie utilisée pour la détermination de normes de qualité environnementale. INERIS Direction des Risque Chroniques, Rapport d'étude DRC-11-118981-08866A, 05/08/2011, 34 p.
- Lavoie M., Sabatier S., Garnier-Laplace J., Fortin C. (2014). Uranium accumulation and toxicity in the green alga *Chlamydomonas reinhardtii* is modulated by pH. Environ. Toxicol. Chem. 33, 1372-1379.
- Markich S.J., Camilleri C. (1997). Investigation of metal toxicity to tropical biota: Recommendations for revision of the Australian water quality guidelines. Supervising Scientist Report 127, Supervising Scientist: Canberra.
- Mathews T., Beaugelin-Seiller K., Garnier-Laplace J., Gilbin R., Adam C., Della-Vedova C. (2009). A probabilistic assessment of the chemical and radiological risks of chronic exposure to uranium in freshwater ecosystems. Environ. Sci. Technol. 43(17): 6684-6690.
- Maynard E.A., Hodge H.C. (1949). Studies of the toxicity of various uranium compounds when fed to experimental animals. In: The Pharmacology and Toxicology of Uranium Compounds. Nations Nuclear Energy Service. Division VI, vol. I, C Voegtlin and HC Hodge, Ed. Mc Graw Hill, New-York, NY, p309-376.
- Miljoministeriet (2011). Fastsættelse af kvalitetskriterier for vandmiljøet. Uran CAS nr. 7440-61-1. Disponible à l'adresse : http://www2.mst.dk/blst_databaser/havkvalitet/visDetaljer.asp?pWhat=MST&pStof_id=354 (page consultée le 11 décembre 2013).
- OMS (Organisation Mondiale de la Santé, 2004). Guidelines for Drinking-water Quality, Third edition, incorporating first and second addenda. Volume 1, recommendations. Genève 2006, 516 p.
- OMS (Organisation Mondiale de la Santé, 2012). Chemical hazards in drinking-water: Uranium. Disponible à l'adresse : http://www.who.int/water_sanitation_health/dwq/chemicals/uranium/en/ (page consultée le 3 avril 2013).
- Pickett J.B., Specht W.L., Keyes J.L. (1993). Acute and chronic toxicity of uranium compounds to *Ceriodaphnia dubia*. Westinghouse Savannah River Co, rapport WSRC-RP-92-995, préparé pour le Département de l'Énergie américain (US-DoE), contrat DE-AC09-89SR 18035.

- Pradines C., Wiktor V., Camilleri V., Gilbin R. (2005). Development of biochemical methods to estimate the subcellular impact of uranium exposure on *Chlamydomonas reinhardtii*. *Radioprotection*, 40 (1), S163-S168.
- Salminen R. (ed.) 2005. *Geochemical Atlas of Europe. Part 1: Background Information, Methodology and Maps*. Espoo: Geological Survey of Finland.
- SETAC (Society of Environmental Toxicology and Chemistry, 2005). *Use of Sediment Quality Guidelines and Related Tools for the Assessment of Contaminated Sediments*. Wenning et Ingersoll, eds. Disponible à l'adresse : http://c.ymcdn.com/sites/www.setac.org/resource/resmgr/publications_and_resources/sqgsummary.pdf (page consultée le 02 août 2013).
- Trenfield M.A., Ng J.C., Noller B.N., Markich S.J., Van Dam R.A. (2011). Dissolved Organic Carbon Reduces Uranium Bioavailability and Toxicity. 2. Uranium[VI] Speciation and Toxicity to Three Tropical Freshwater Organisms. *Environ. Sci. Technol.* 45(7): 3082-3089.
- WISE (World Information Service on Energy, 2011). *Uranium project/uranium radiation and health effect/uranium toxicity*. Disponible à l'adresse : <http://www.wise-uranium.org/utox.html> (page consultée le 02 août 2013).