

# Uranium naturel et environnement

$^{238}_{92}\text{U}$



Olivier Seignette/Mikael Lafontain/IRSN

## Sommaire

Caractéristiques	3
Origines	4
Concentrations dans l'environnement	4
Métrologie, techniques d'analyse, limites de détection	6
Mobilité et biodisponibilité en milieu terrestre	8
Mobilité et biodisponibilité en milieu aquatique continental	9
Mobilité et biodisponibilité en milieu marin	10
Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes semi-naturels	11
Dosimétrie environnementale	11
Toxicité environnementale	12
En résumé ...	13
Récapitulatif des méthodes de mesure	14
Paramètres radioécologiques usuels : milieu terrestre	14
Paramètres radioécologiques usuels : eaux douces	16
Paramètres radioécologiques usuels : milieu marin	17
Paramètres radiotoxicologiques	18
Bibliographie succincte	19

Cette fiche résume le comportement de l'élément chimique dans les principaux compartiments des écosystèmes terrestres et aquatiques, sous les deux hypothèses suivantes. La discrimination isotopique est négligeable, ce qui est vérifié pour la plupart des éléments traités. Lorsque l'élément possède des isotopes stables, l'analogie de comportement entre ses isotopes stables et radioactifs est admise implicitement, sachant toutefois que pour les éléments existant à l'état naturel, la forme chimique et le milieu d'émission des rejets anthropiques sont susceptibles d'impliquer des voies et processus de transfert autres que ceux identifiés pour l'élément stable naturel.

Le ou les isotopes radioactifs désignés dans l'intitulé de la fiche correspondent aux radionucléides d'importance radioécologique majeure, au sens des quantités et de la rémanence dans l'environnement, d'autres isotopes, radioactifs ou stables, pouvant être cités à titre complémentaire. Les informations, volontairement simplifiées, sont destinées à refléter l'état des connaissances sur le sujet à la date de mise à jour et à proposer des valeurs pour les principaux paramètres radioécologiques usuels permettant une estimation des transferts dans l'environnement et plus particulièrement au sein de la chaîne alimentaire.

Rédaction : J. Garnier-Laplace, C. Colle, M. Morello.

Vérification : B. Bonin

Date de rédaction : 14/05/01

Révision :

Écosystème terrestre : L. Février,

Écosystème aquatique continental : O. Simon

Écosystème marin : D. Boust, J. Pommier

Métrologie : C. Augeray, B. Boulet, X. Cagnat, J. Loyer, J.L. Picolo, R. Vidal

Concentrations dans l'environnement : P. Renaud

Vérification : K. Beaugelin-Seiller

Date de révision : 18/12/2010

Ce document est la propriété intellectuelle de l'IRSN et ne peut être reproduit sans son autorisation

## Caractéristiques

### Chimiques

L'uranium, élément chimique de numéro atomique 92, fait partie de la famille des actinides. Métal gris pyrophorique très dense à l'état pur, l'uranium se retrouve toujours en combinaison avec d'autres éléments et notamment l'oxygène. Il possède quatre valences possibles (+III à +VI), les valences 4 et 6 étant les plus répandues dans les minerais. Les conditions de passage de la valence 4 à la valence 6 dépendent du potentiel d'oxydoréduction du milieu ; elles sont voisines des conditions de passage du fer ferreux au fer ferrique. L'uranium hexavalent est beaucoup plus soluble que l'uranium tétravalent ; il forme des complexes, les plus fréquents étant les uranylcarbonates et les uranylesulfates.

### Nucléaires

L'uranium naturel est composé de trois principaux isotopes ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ) tous radioactifs. Les deux isotopes les plus abondants sur terre sont le  $^{238}\text{U}$  et le  $^{235}\text{U}$ , qui sont présents depuis l'origine de la planète. Le  $^{234}\text{U}$  est produit par désintégration  $\alpha$  de  $^{238}\text{U}$  et ne représente qu'une partie infime de la masse d'uranium totale. En revanche, il est plus radioactif que les précédents et contribue pour moitié environ à la radioactivité totale de l'uranium naturel. L'isotope  $^{235}\text{U}$  est le seul isotope fissile naturel. Les formes enrichies, appauvries ou de retraitement de l'uranium correspondent à des pourcentages variables de ces isotopes. D'autres isotopes radioactifs de l'uranium existent, mais ils sont produits artificiellement (cf. tableau ci-après).

L'uranium naturel tel qu'il est extrait de son minerai contient en masse 99,275 % de l'isotope 238, 0,719 % de l'isotope 235 et 0,0057 % de l'isotope 234. Ainsi, pour 1 g d'uranium naturel et sans considérer la radioactivité des descendants, l'élément chimique se répartit comme suit :

- 0,99275 g d'  $^{238}\text{U}$  soit approximativement 12 311 Bq ;
- 0,00719 g d'  $^{235}\text{U}$  soit approximativement 576 Bq ;
- 0,000057 g d'  $^{234}\text{U}$  soit approximativement 12 880 Bq.

Isotope	$^{232}\text{U}$	$^{233}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
Abondance naturelle (% en masse)	-	-	0,0057	0,719	-	99,275
Période radioactive (an)	69,8	$1,6 \times 10^5$	$2,5 \times 10^5$	$7,04 \times 10^8$	$2,37 \times 10^7$	$4,47 \times 10^9$
Activité massique (Bq.g <sup>-1</sup> )	$8,17 \times 10^{11}$	$3,56 \times 10^8$	$2,30 \times 10^8$	$8,00 \times 10^4$	$2,36 \times 10^6$	$1,24 \times 10^4$
Précurseurs	$^{232}\text{Th}$ $^{232}\text{Pa}$ $^{232}\text{Np}$ $^{236}\text{Pu}$	$^{233}\text{Pa}$ $^{233}\text{Np}$ $^{237}\text{Pu}$	$^{234m}\text{Pa}$ $^{234}\text{Pa}$ $^{234}\text{Np}$ $^{238}\text{Pu}$	$^{235m}\text{U}$ $^{235}\text{Np}$ $^{239}\text{Pu}$	$^{236}\text{Pa}$ $^{236m}\text{Np}$ $^{236}\text{Np}$ $^{236}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pa}$ $^{242}\text{Pu}$
Descendants	$^{228}\text{Th}$	$^{229}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}$	$^{231}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$	$^{234}\text{Th}$
<b>Émission(s) principale(s) par désintégration (keV) (probabilité d'émission %)</b>						
$\alpha$	5 320 (68,8)	4 824 (82,7)	4 775 (71,4)	4 397 (54)	4 495 (76)	4 198 (77,5)
$\gamma$	57,8 (0,2)	42,5 (0,065)	53,2 (0,12)	185,7 (57,1)	49,4 (0,072)	49,6 (0,068)
X	13,41 (10,2)	13,41 (7)	13,41 (9,3)	13,41 (23,2)	13,41 (7,9)	13,41 (7,3)

(Nucleonica ; CE, 2009)

## Origines

### Naturelle

L'origine de ce radioélément est exclusivement naturelle avec une redistribution liée aux activités anthropogéniques (Paulin, 1997). Quatre sources principales d'activité industrielle enrichissent en uranium certains compartiments de la biosphère comme les sols, les sédiments ou les eaux continentales.

- **le cycle du combustible nucléaire** depuis l'exploitation de mines uranifères jusqu'au traitement des déchets : la France ne détient que 3 % des réserves et elle n'est plus productrice d'uranium sur son territoire. En général, le combustible nucléaire est soit un alliage d'uranium, soit le dioxyde d'uranium, soit un mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium, soit encore un carbure d'uranium ;
- **l'utilisation militaire d'uranium appauvri** (uranium naturel dont le contenu en  $^{235}\text{U}$  a été réduit de 0,7 à 0,2 %). Le métal est utilisé pour ses propriétés pyrophoriques et les sites bombardés par ce type d'armes sont enrichis en fines particules d' $\text{UO}_2(\text{s})$  déposées à proximité des lieux d'explosion ;
- **l'utilisation de charbon** dont la combustion conduit à l'émission atmosphérique d'uranium ;
- **l'utilisation agricole d'engrais phosphatés** issus de phosphates naturels particulièrement riches en uranium 238.

### Artificielle

Sans objet.

## Concentrations dans l'environnement

**Règle de conversion** : les conversions activité/masse présentées dans la suite de la fiche sont réalisées sous l'hypothèse de la mesure d'uranium 238 en proportion attendue dans l'uranium naturel, avec l'équivalence 1 Bq d' $^{238}\text{U}$  correspond à 0,08 mg d'uranium naturel. Ces conversions sont faites à titre informatif et comparatif. En effet, en raison de possibles déséquilibres entre isotopes de l'uranium dans les compartiments échantillonnés, seule la mesure est valide.

Les activités en uranium des principales composantes de l'environnement continental - air, végétaux, animaux, eaux de surface continentales et sédiments, eaux souterraines - sont liées à celles du sol, elles-mêmes liées aux formations géologiques sous-jacentes.

Globalement, les sols des bassins sédimentaires et des formations calcaires sont plus pauvres en uranium que ceux des massifs granitiques. Plus localement, des particularités géologiques peuvent également conduire à des singularités des teneurs en uranium, notamment observées dans les cours d'eau ou dans les eaux souterraines (IRSN, 2009). En Europe, la concentration médiane en uranium des sols est estimée aux environs de  $2 \text{ mg.kg}^{-1}$ , avec une gamme de variation allant de moins de  $0,1$  à plus de  $50 \text{ mg.kg}^{-1}$  (De Vos et Tarvainen, 2006). Les plus fortes concentrations sont rencontrées en France, dans le massif central, en lien avec l'altération hydrothermale secondaire des coupoles granitiques, les dépôts en veine ou encore la présence de schistes noirs autuniens. Ces résultats sont cohérents avec les mesures d'activité en uranium 238 de la majeure partie des sols français, qui varient entre quelques  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  et quelques centaines de  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  (quelques dixièmes à dizaines de  $\text{mg.kg}^{-1} \text{ sec}$ ). Elles peuvent atteindre le millier de  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  (une centaine de  $\text{mg.g}^{-1}$ ) dans des sols granitiques uranifères. Le Roux (2007) propose une moyenne globale (toutes régions, tous sites et tous types de sol confondus) de  $40 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  (soit environ  $3 \text{ mg.kg}^{-1} \text{ sec}$ ). Toutefois, une telle moyenne est obligatoirement relative car très influencée par la représentativité des sols analysés au regard des différents sols français. En l'occurrence, les échantillons de sols sur substrat sédimentaire y sont probablement surreprésentés. Dans leur compilation de données française d'origines diverses, Picat *et al.* (2002) indiquent une moyenne de  $98 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  ( $8 \text{ mg.kg}^{-1}$ ) autour des installations de l'amont du cycle du combustible nucléaire, pour une gamme de variation de 25 à  $173 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  (2 à  $14 \text{ mg.kg}^{-1}$ ).

L'UNSCEAR évalue l'activité dans l'air en  $^{238}\text{U}$  aux alentours de  $1 \mu\text{Bq.m}^{-3}$  (UNSCEAR, 2000), en se basant sur quelques références mesurant l'uranium en dehors de l'influence d'installations nucléaires, comme en Pologne ( $1\text{-}18 \mu\text{Bq.m}^{-3}$  ; soit  $0,08$  à  $1,5 \text{ ng.m}^{-3}$ ) ou aux USA ( $0,9\text{-}5 \mu\text{Bq.m}^{-3}$  ;  $0,07$  à  $0,4 \text{ ng.m}^{-3}$ ). Sur le site de Cadarache (France), dont le substrat est de nature sédimentaire, une valeur plus faible de  $0,1 \mu\text{Bq.m}^{-3}$  ( $0,008 \text{ ng.m}^{-3}$ ) correspondant au bruit de fond local a récemment été mesurée.

En Europe, la médiane de la concentration en uranium des sédiments est de l'ordre de  $2 \text{ mg.kg}^{-1}$ , avec une gamme de variation comprise entre moins de 1 à environ  $90 \text{ mg.kg}^{-1}$  (De Vos et Tarvainen, 2006).

De même que pour les sols, les sédiments de rivières du massif central peuvent présenter des concentrations en uranium élevées, jusqu'à 59 mg.kg<sup>-1</sup>. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par la mesure de l'<sup>238</sup>U. En effet, selon Le Roux (2007), les activités en uranium des sédiments des cours d'eau français sont similaires à celles des sols : de quelques Bq.kg<sup>-1</sup> sec à quelques centaines de Bq.kg<sup>-1</sup> sec avec une moyenne autour de 40 Bq.kg<sup>-1</sup> également (soit environ 3 mg.kg<sup>-1</sup> sec).

En Europe, le fond géochimique moyen des eaux de surface continentales est de l'ordre de 0,3 µg.L<sup>-1</sup> quand il est estimé à 0,5 µg.L<sup>-1</sup> au plan mondial (De Vos et Tarvainen, 2006). La variation de la concentration en uranium des eaux de rivière s'étend cependant sur plus de 4 ordres de grandeur (teneur moyenne entre 0,02 et 6 µg.L<sup>-1</sup> ; Bonin et Blanc, 2001) allant jusqu'à 11 µg.L<sup>-1</sup> voire très exceptionnellement plus de 20 µg.L<sup>-1</sup>. En France, le fond géochimique en uranium des eaux de rivière est estimé à 0,44 µg.L<sup>-1</sup> dans les zones sédimentaires et 0,15 µg.L<sup>-1</sup> dans les zones de socle hercynien et alpin (Salpeteur et Angel, 2010). Cette distribution inverse par rapport à celle rencontrée dans les sols est liée à la chimie des eaux, et notamment à leur acidité. Les activités mesurées en uranium 238 corroborent ces gammes de variation, en s'établissant pour le territoire national entre 0,01 et 0,1 Bq.L<sup>-1</sup> (environ 1 à 10 µg.L<sup>-1</sup>). Des activités plus élevées sont régulièrement mesurées dans les eaux de consommation française, d'origine essentiellement souterraine. En effet, si 95 % des prélèvements d'eaux d'adduction analysées entre 2005 et 2007 présentent une concentration en <sup>238</sup>U inférieure à 0,1 Bq.L<sup>-1</sup>, 2,5 % se trouvent entre 0,1 et 0,2 Bq.L<sup>-1</sup> et 1 % dépasse cette valeur, avec un maximum de 1,5 Bq.L<sup>-1</sup> (Loyen et Thomassin 2009, ASN-IRSN, 2009).

Chez les poissons du Rhône, la concentration en <sup>238</sup>U (moyenne sur 1 000 échantillons) a été estimée à 1,0 ± 0,2 Bq.kg<sup>-1</sup> frais, soit 0,08 mg.kg<sup>-1</sup> frais (Lambrechts *et al.*, 1992). La même étude présente pour les végétaux aquatiques de ce fleuve des concentrations moyennes en <sup>238</sup>U variant de 71 ± 19 Bq.kg<sup>-1</sup> sec (5,8 mg.kg<sup>-1</sup> sec) pour les mousses aquatiques à 41 ± 7 Bq.kg<sup>-1</sup> sec (3,3 mg.kg<sup>-1</sup> sec) pour les végétaux immergés.

Les publications internationales sur les activités de l'uranium dans l'air et dans les composantes biologiques de l'environnement, végétaux et animaux, et notamment dans les denrées sont rares. L'UNSCEAR en a effectué une compilation (UNSCEAR, 2000). Le tableau ci-dessous reproduit les gammes de valeurs pour l'Europe (Italie, Allemagne, Royaume-Uni, Roumanie et Pologne essentiellement) et le reste du monde, ainsi que la valeur de référence retenue.

mBq.kg <sup>-1</sup> (µg.kg <sup>-1</sup> )	Lait	Viande	Céréales	Légumes feuilles	Légumes racines et fruit
<b>Europe</b>	0,1 - 4,9 (0,008 - 0,40)	1 - 20 (0,08 - 1,62)	5 - 400 (0,40 - 32,5)	16 - 72 (1,30 - 5,84)	0,4 - 77 (0,04 - 6,24)
<b>Reste du monde</b>	0,7 - 17 (0,06 - 1,38)	0,8 - 13 (0,06 - 1,06)	1 - 20 (0,008 - 1,62)	6 - 2 200 (0,49 - 178)	0,9 - 2 900 (0,07 - 235)
<b>Valeur de référence</b>	1 (0,008)	2 (0,16)	20 (1,62)	20 (1,62)	3 (0,24)

Peu de données sont disponibles pour la France hors influence d'installations nucléaires et il est difficile de s'y référer, les valeurs ci-dessus sont donc à utiliser par défaut.

En milieu marin, les activités en uranium sont plus homogènes. La teneur moyenne de cet élément est de 3,3 µg.L<sup>-1</sup>, l'uranium étant souvent complexé ou associé aux matières en suspension (Paquet *et al.*, 2009). Les concentrations en uranium rencontrées dans les sédiments des mers épicontinentales sont peu différentes de celles de la croûte terrestre : environ 3 mg.kg<sup>-1</sup>, soit 37 Bq.kg<sup>-1</sup> ; les concentrations en uranium des sédiments marins profonds sont du même ordre de grandeur. Les résidus de la production d'acide phosphorique (phosphogypses) peuvent conduire localement à des concentrations plus élevées, de l'ordre de 100 mg.kg<sup>-1</sup>.

La bioaccumulation de l'uranium dans les organismes marins est généralement faible. Les concentrations dans les algues et le plancton sont de l'ordre de 1 à 10 µg.g<sup>-1</sup> sec (Knauss et Ku, 1983 ; Szefer, 1987). Des concentrations comprises entre 0,1 et 0,3 µg.g<sup>-1</sup> sec ont été rapportées pour des mollusques et des crustacés en mer Baltique (Szefer et Wenne, 1987). Des concentrations plus faibles ou équivalentes (crustacés : 0,003-0,04 µg.g<sup>-1</sup> ; mollusques : 0,002-0,3 µg.g<sup>-1</sup>) ont été mesurées dans les zones côtières du Japon soumises à des apports estuariens (Takata *et al.*, 2011).

Dans l'environnement d'une usine de traitement de l'uranium (moins de 2 km), l'activité de l'uranium est très variable de 1 à 900 µBq.m<sup>-3</sup> (Ahier et Tracy, 1997). A proximité d'une mine à ciel ouvert en activité, la concentration atteint 33 µBq.m<sup>-3</sup> d'air (Thomas, 1997). En Serbie et au Monténégro, sur des sites où

ont été employées des munitions comportant de l'uranium appauvri, les activités dans l'air varient entre 2 et 42  $\mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  (Jia *et al.*, 2005). La valeur la plus élevée a été mesurée sur un site dont les sols recèlent davantage d'uranium naturel.

## Métrologie, techniques d'analyse, limites de détection

La quantification de l'uranium dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par méthodes pondérales soit par méthodes isotopiques (Wagner et Vian, 1999 ; Augeray *et al.*, 2008).

Selon les cas, l'analyse d'échantillons liquides ou solides peut être réalisée directement ou après traitement de l'échantillon (minéralisation, purification, filtration).

### Méthodes pondérales

Principe : l'uranium total contenu dans la prise d'essai est caractérisé par sa masse, exprimée en  $\mu\text{g}$ , rapportée à l'unité de volume ou de masse de l'échantillon.

#### Fluorimétrie

Les sels d'uranium dissous dans l'eau ou obtenus en solution après minéralisation sont concentrés par évaporation et séparés par chromatographie sur support papier. Une pastille préparée par calcination et fusion avec un mélange de fluorure et de carbonate de sodium anhydre est soumise au rayonnement ultra violet d'une longueur d'onde d'excitation d'environ 360 nm. Les sels d'uranium émettent une fluorescence située dans le spectre du visible dont l'intensité mesurée est comparée à celle d'une solution de travail (AFNOR, 2003a). La fluorimétrie permet de caractériser des teneurs en uranium de l'ordre de  $1 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  dans une eau, l'incertitude de mesure est de l'ordre de 20 % ( $k = 2$ ).

Les performances relativement restreintes de cette technique la font souvent utiliser pour des analyses non quantitatives destinées à tester de manière rapide la présence d'uranium en forte concentration.

#### Spectrométrie d'émission ou absorption atomique (ICP-AES)

Après minéralisation pour les solides, filtration et purification si nécessaire pour les liquides, l'échantillon est nébulisé. L'aérosol produit est transféré dans un plasma qui, par excitation atomique, émet un spectre de raies caractéristiques de l'élément recherché. L'intensité d'émission est proportionnelle à la concentration (AFNOR, 2003b). Selon le type d'appareillage et en particulier les performances du système de nébulisation, l'ICP-AES permet de quantifier des concentrations minimales de 10 à  $100 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  dans une eau.

Remarque : des eaux parfaitement limpides peuvent ne pas nécessiter de traitement préalable.

### Méthodes isotopiques

Principe : l'uranium total contenu dans la prise d'essai est caractérisé par l'activité de ses différents isotopes ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ), exprimée en Bq, rapportée à l'unité de volume ou de masse de l'échantillon.

#### Spectrométrie gamma

La quantification par spectrométrie gamma avec une précision suffisante des isotopes de l'uranium dépend :

- de l'énergie et de l'intensité du rayonnement gamma émis par chaque isotope ;
- de l'activité spécifique de l'échantillon ;
- le cas échéant du coefficient de concentration appliqué (en cas de traitement de l'échantillon par évaporation ou calcination) ;
- de la géométrie de comptage ;
- de la densité de l'échantillon ;
- du type de détecteur utilisé ;
- de l'environnement dans lequel la mesure est conduite.

L'identification et la quantification des isotopes non émetteurs gamma, émetteurs gammas de faible intensité d'émission ou encore émetteurs gamma dans une zone d'interférence avec l'émission de photons par d'autres radionucléides, peut être réalisée par l'intermédiaire de leurs descendants à vie courte, également émetteurs de gammas, dès lors que l'équilibre radioactif père/fils est atteint. Une grande vigilance doit être apportée à ces équilibres (Papachristodoulou *et al.*, 2003). Les causes de déséquilibre sont nombreuses et variées : différences de solubilité, ou de fixation dans les organismes vivants par exemple.

### ■ Uranium 238

Cet isotope n'émet qu'une raie gamma de faible intensité (0,068 %) et à basse énergie (49,6 keV) dont l'utilisation conduit à des limites de détection de l'ordre de plusieurs centaines de Bq.kg<sup>-1</sup>. Cependant, sous l'hypothèse d'équilibre radioactif, les raies émises par ses descendants peuvent être utilisées, les plus communément employées étant celles du <sup>234</sup>Th [63 keV (4,8 %), 92,4 keV (2,81%) et 92,8 keV (2,77%)]. Au-delà du <sup>226</sup>Ra, les équilibres sont potentiellement très perturbés par le comportement du descendant gazeux qu'est le <sup>222</sup>Rn.

### ■ Uranium 235

La raie la plus intense de cet isotope (57,1 % à 185,7 keV) est proche d'une raie du <sup>226</sup>Ra à 186,2 keV (3,59 %). Mais ses raies sans interférences (143,76 keV (10,96 %), 163,3 keV (5,08 %) et 205,3 keV (5,01 %) sont à éviter car perturbées par des effets de sommation. La raie à 185,7 keV doit donc être utilisée et la contribution du <sup>226</sup>Ra déduite, par la connaissance de ses descendants situés au-delà du <sup>222</sup>Rn, en particulier le <sup>214</sup>Pb à 295,22 keV (18,5 %) dont il faut pouvoir garantir l'équilibre.

### ■ Uranium 234

Comme pour l'uranium 238, cet isotope n'émet qu'une raie gamma de faible intensité (0,1253 %) et à basse énergie (53,2 keV) dont l'utilisation conduit également à des limites de détection de l'ordre de plusieurs centaines de Bq.kg<sup>-1</sup>. Il ne présente pas de descendants immédiats à vie courte permettant sa quantification. Pour son descendant <sup>230</sup>Th, émetteur à 68 keV (0,38%), la LD reste de l'ordre de plusieurs dizaines de Bq.(L<sup>-1</sup> ou kg<sup>-1</sup>).

Cependant, même si globalement la méthode est moins performante (10 à 100 Bq.(L<sup>-1</sup> ou kg<sup>-1</sup>)) que la spectrométrie alpha ou l'ICP-MS, elle est utilisée fréquemment comme mesure préliminaire pour éviter de mettre en œuvre inutilement des méthodes plus lourdes et pour optimiser la concentration du traceur nécessaire à ces deux méthodes.

#### *Spectrométrie alpha*

Cette technique permet également de quantifier chacun des isotopes de l'uranium. Elle présente l'avantage d'atteindre des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie gamma. Elle requiert cependant, obligatoirement en préalable à la mesure, une préparation chimique de l'échantillon.

Cette préparation consiste, après une éventuelle concentration, à séparer l'uranium à mesurer dans la prise d'essai solide ou liquide, puis à fabriquer une source mince permettant la détection et la quantification des particules alpha.

Les principales étapes de l'analyse sont (AFNOR, 2005a) :

- ajout d'un traceur ;
- minéralisation de l'échantillon ;
- concentration par précipitation des phosphates ;
- séparation chromatographique sur résine ;
- coprécipitation d'un fluorure de cérium ;
- filtration ;
- mesure en spectrométrie alpha.

L'uranium 232 est utilisé comme traceur car aucune interférence alpha n'est observée avec les isotopes 234, 235 et 238 de l'uranium. Les énergies d'émissions alpha de ces quatre isotopes, respectivement de 5 320, 4 775, 4 397 et 4 198 keV, sont aisément discriminées.

La mesure de l'activité ainsi que la détermination du rendement global de l'analyse s'effectuent par spectrométrie alpha. La spectrométrie peut être effectuée au moyen de détecteurs à gaz (chambre à grille) ou de semi conducteurs au silicium, selon que l'on souhaite privilégier respectivement le rendement de comptage ou la résolution en énergie.

Les limites de détection classiquement atteintes sont de l'ordre de 0,01 Bq.(L<sup>-1</sup> ou kg<sup>-1</sup>) soit environ 1 µg.(L<sup>-1</sup> ou kg<sup>-1</sup>).

#### *Spectrométrie de masse*

La mesure par spectrométrie de masse (ICP-MS) permet de quantifier le nombre d'atomes de chaque isotope des éléments présents dans l'échantillon (AFNOR, 2005b ; ISO, 2007). La conversion en activité est ensuite possible en utilisant la valeur de l'activité spécifique (Bq.g<sup>-1</sup>) de chacun des isotopes radioactifs.

A niveau d'activité égal, les isotopes les plus aisément détectés par spectrométrie de masse sont <sup>238</sup>U et <sup>235</sup>U car leur activité spécifique est nettement plus faible que celle de <sup>234</sup>U. L'ICP-MS permet également

de déceler la présence de  $^{236}\text{U}$ , indicateur de l'origine naturelle ou non d'un échantillon d'uranium. Approximativement :

- uranium 238 :  $1 \mu\text{g.kg}^{-1} = 0,01 \text{ Bq.kg}^{-1}$
- uranium 235 :  $1 \mu\text{g.kg}^{-1} = 0,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$
- uranium 234 :  $1 \mu\text{g.kg}^{-1} = 230 \text{ Bq.kg}^{-1}$
- uranium 236 :  $1 \mu\text{g.kg}^{-1} = 2,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$

L'uranium 233 est utilisé comme traceur car aucune interférence de masse n'est observée avec les isotopes 234, 235, 236 et 238. Cependant, si la quantité de thorium 232 est importante, la recombinaison du thorium 232 avec 1 hydrogène peut interférer à la masse 233 du traceur. La purification sur résine échangeuse d'ions permet de s'affranchir de ce problème en éliminant le thorium.

L'avantage de l'ICP-MS par rapport à la spectrométrie alpha est la rapidité de la mesure et la possibilité de faire une mesure directe (sans purification chimique) pour des matrices liquides peu chargées en sels.

Pour l'uranium 238, les limites de quantification calculées avec les protocoles de routine et en utilisant un ICP-MS quadripolaire sont de l'ordre du  $\text{mBq.kg}^{-1}$  d'échantillon cendre pour les matrices solides et du centième de  $\text{mBq.L}^{-1}$ , soit de l'ordre du  $\text{ng.L}^{-1}$ , pour les eaux ou liquides ayant eu un traitement radiochimique. Sur les eaux ou liquides mesurés directement après dilution - sans radiochimie - la spectrométrie de masse permet une limite de détection de l'ordre de la centaine de  $\text{ng.L}^{-1}$  soit de l'ordre du  $\text{mBq.L}^{-1}$ .

## Mobilité et biodisponibilité en milieu terrestre

### Sols

Le comportement de l'uranium dans les écosystèmes terrestres est étroitement lié aux conditions d'oxydo-réduction du milieu (Cuney *et al.*, 1992 ; Gueniot *et al.*, 1988). En milieu oxydant, l'uranium se trouve sous la valence +VI (ion uranyle  $\text{UO}_2^{2+}$ ) qui est la forme la plus stable et la plus mobile. En conditions anaérobies, il peut être réduit à l'état +IV en  $\text{U(OH)}_4$  ou  $\text{U(OH)}_3$  ou encore réagir avec les sulfures.

L'uranium a une mobilité moyenne dans les sols. En condition aérobie, il se complexe facilement avec la matière organique, les carbonates, les phosphates et les sulfates. Ces composés, plus ou moins solubles, ainsi que les oxy-hydroxydes de fer déterminent pour une grande part la mobilité de l'uranium dans les sols. Ces phénomènes conduisent, en particulier, à l'existence de zones d'accumulation dans les horizons riches en matières organiques. Les minéraux argileux ne jouent qu'un rôle secondaire dans la rétention de l'uranium par les sols. La corrélation souvent observée entre la richesse d'un sol en particules fines et sa teneur en uranium est probablement due à l'adsorption à la surface des particules et non à une rétention de type ionique ou à une rétention intrafoliaire. En milieu réducteur (par exemple dans les sols inondés ou au contact d'une nappe phréatique), l'uranium se trouve à la valence +IV et a alors tendance à précipiter.

### Végétaux

Du fait qu'il est présent dans tous les sols sous forme partiellement disponible, on trouve de l'uranium dans toutes les plantes (Mordtvedt, 1996). Les concentrations moyennes mesurées, exception faite des végétaux provenant de zones uranifères, sont de l'ordre de quelques milli-Becquerels par kilogramme de matière fraîche avec une importante variabilité en fonction des types de sols. De façon générale, les végétaux inférieurs absorbent davantage l'uranium que les végétaux supérieurs. Pour ces derniers, il y a une forte corrélation entre la teneur en uranium des sols et celle des plantes.

Le transfert racinaire semble être la voie prépondérante de contamination des végétaux terrestres (Paquet *et al.*, 2009). L'absorption racinaire est sous la dépendance des mêmes paramètres qui conditionnent la mobilité de l'uranium dans les sols, à savoir leur teneur en matière organique et la présence de phosphates, sulfates et carbonates. Différentes études ont mis en évidence un effet de compétition sur le transfert sol-plante des ions calcium et magnésium lorsque leur concentration dans le sol est importante. Ce phénomène s'accroît avec l'élévation du pH. Les facteurs de transfert racinaires moyens varient entre  $5 \times 10^{-3}$  et  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  de végétal sec par  $\text{Bq.kg}^{-1}$  de sol sec. Les valeurs les plus élevées sont mesurées sous climat tropical (AIEA, 2010). D'autre part, l'uranium se retrouve en proportion plus importante dans les tiges et les feuilles des plantes que dans les graines ou les fruits.

Il n'y a aucune donnée sur le transfert de l'uranium aux végétaux par voie foliaire. Par défaut, ce sont les valeurs relatives au plutonium qui sont utilisées, ce qui compte tenu d'une mobilité supérieure de l'uranium par rapport au plutonium, conduit probablement à une sous-estimation du transfert.



## Animaux

L'uranium présent dans la viande et les produits laitiers a pour origine la nourriture d'origine végétale des animaux, les aliments de complément élaborés à partir des phosphates naturels et fournis aux vaches laitières (Paquet *et al.*, 2009). L'ingestion de particules de sol, soit directement, soit par l'intermédiaire d'herbe souillée par de la terre, est susceptible d'être une composante importante de la contamination du bétail. Les paramètres de transfert de l'uranium naturel sont connus pour les principales espèces productrices de viande (bovins, ovins et porcins) ainsi que pour le lait de vache. Ils varient entre  $4 \times 10^{-4}$  et  $4,4 \times 10^{-2}$  j.L<sup>-1</sup> pour le lait de vache et entre  $3,9 \times 10^{-4}$  et  $7,5 \times 10^{-1}$  j.L<sup>-1</sup> pour la viande de bovin et la volaille respectivement.

## Produits transformés

Il n'y aucune donnée sur le transfert de l'uranium lors des transformations agro-alimentaires.

## Mobilité et biodisponibilité en milieu aquatique continental

### Eaux

La concentration en uranium total est contrôlée par la forme U(VI) dans les environnements oxydants et la mobilité de l'élément est liée à la fraction colloïdale. L'ion uranyle  $\text{UO}_2^{2+}$  est l'espèce dominante dans les eaux de surface en milieu oxydant, jusqu'à pH 6. Au-delà, apparaissent les formes hydroxylées puis pour des pH supérieurs à 8, les formes carbonatées. En plus du pH et du potentiel d'oxydoréduction, la spéciation de l'uranyle en eau douce peut être influencée par la concentration en ligands organiques — en particulier les substances humiques qui forment des complexes d'uranyle stables — et contribue ainsi à la migration de l'élément dans les systèmes aquatiques (Moulin *et al.*, 1992). En rivière, plus de 90 % de l'uranium peut être associé à la fraction colloïdale, soit en liaison avec des colloïdes de fer, soit par interactions avec les acides humiques ou les humines. Cette fraction colloïdale gouverne les mécanismes de transport de l'uranium dans les hydrosystèmes et a tendance à diminuer linéairement avec l'augmentation de la salinité. En milieu estuarien, moins de 5 % de l'uranium est associé à cette fraction pour une salinité de l'ordre de 3 ‰ (Porcelli *et al.*, 1997 ; Andersson *et al.*, 1998).

### Sédiments

La rétention de l'uranium par les matières en suspension et les sédiments est d'autant plus faible que les conditions sont oxydantes et alcalines (Bird et Evenden, 1996). Dans ces conditions pH-E<sub>H</sub>, les formes dominantes présentes sont électriquement neutres ou chargées négativement. Les eaux fortement carbonatées entraînent une diminution de l'adsorption de l'uranium sur les particules en raison d'une augmentation de la solubilité de l'élément (complexes uranyles carbonatés dominants). À pH acide, les propriétés d'échanges cationiques des sédiments peuvent contribuer à la rétention des ions uranyles de charge positive. Les ions  $\text{Ca}^{2+}$  peuvent entrer en compétition dans l'échange d'ions sur les ligands minéraux potentiels de la phase solide tels que la calcite par exemple. La concentration en phosphates peut entraîner la précipitation des ions uranyles et donc leur transfert vers le compartiment sédimentaire. Celui-ci peut également être gouverné par le processus d'adsorption sur la fraction organique des solides et/ou, en milieu réducteur, résulter d'une réduction de U(+VI) vers U(+IV), suivi d'une précipitation de ce dernier. L'uranium a tendance à se lier aux hydroxydes de fer, et lors d'extractions séquentielles classiques, se retrouve principalement dans la fraction solubilisée par une attaque acide. La teneur en argiles influe sur la rétention de l'uranium par la phase solide.

### Végétaux

Les transferts aux végétaux aquatiques ont été très peu étudiés. Chez les végétaux, l'uranium présente une haute affinité pour les protéines et les lipides au pH intracellulaire, limitant la réversibilité des processus d'absorption. Les phénomènes d'adsorption à la surface des cellules peuvent être dominants en fonction des espèces. Les facteurs de concentrations s'étendent de 100 à 1 000 (sur la base du poids frais) pour une espèce d'algue verte unicellulaire (*Scenedesmus quadricauda*) (Pribil et Marvan, 1976). L'accumulation de l'uranium diminue avec les concentrations de calcium, de magnésium, de phosphate et de ligands organiques et est pH-dépendante (Fortin *et al.*, 2007). La production primaire peut intervenir sur la contamination du sédiment superficiel par dépôt et lyse cellulaire.

Peu de données existent dans la littérature relative à la contamination des macrophytes, bien que leur rôle dans la chaîne alimentaire soit important. Diverses revues bibliographiques donnent des valeurs de facteurs de concentrations (poids frais) de 4 à 2 900 pour les plantes en général. Le facteur de transfert le plus élevée est mesuré chez une espèce de macrophytes, la myriophylle (Paquet *et al.*, 2009).

## Animaux

Chez les organismes animaux (crustacés, mollusques, poissons), le facteur de concentration à partir de l'eau reste très faible. Chez les poissons, les espèces de comportement pélagique accumulent environ 10 fois moins que des espèces de fond et les gammes de variation rencontrées dans la littérature pour les facteurs de concentration globaux (voies directe et trophique) s'étendent de 0,01 à 20 (poids frais). Chez les invertébrés, le facteur de concentration varie entre 48 et 1 700. Les tissus cibles sont les tissus osseux et les reins, et dans une moindre mesure, le foie, les branchies puis les muscles, le système digestif et les gonades (Cooley et Klaverkamp, 2000 ; Simon *et al.*, in press). La gamme pour le facteur de concentration des muscles s'étend de 1,55 à 24,3 (L.kg<sup>-1</sup> frais) contre 2001 à 8 000 pour les tissus osseux (Clulow *et al.*, 1998). Les valeurs de transferts direct (par la colonne d'eau) et alimentaire de l'uranium ne mettent pas en évidence de phénomène de bioamplification (Paquet *et al.*, 2009).

Dans les cellules animales, l'uranium se trouve plus particulièrement dans les sphérocristaux et les lysosomes où il co-précipite avec le phosphore (granules de phosphates). Ce phénomène est particulièrement bien observé dans la glande digestive et l'exosquelette/coquille pour les crustacés et les mollusques, et les branchies et le foie pour les poissons. Il y a également formation de granules denses intranucléaires dont la structure est à rapprocher de celle qui est observée dans le cas des intoxications par des métaux stables (Ribera *et al.*, 1996). Ainsi près de 80 % des teneurs accumulées dans le bivalve d'eau douce *Corbicula fluminea* se retrouvent dans la fraction insoluble subcellulaire (débris cellulaire, granules, organites). Dans les branchies de ce mollusque, les concentrations accumulées (après 42 jours) restent constantes après 60 jours de dépuración (Simon et Garnier-Laplace, 2004).

L'uranium se trouve préférentiellement dans deux organes ; le rein et l'os/le squelette. La fraction soluble de l'uranium (constituée de complexes de faibles poids moléculaires), filtrée par le glomérule rénal est éliminée en quelques semaines (80 - 90 %). La substitution de calcium par l'uranium dans la matrice d'hydroxyapatite favorise le piégeage dans les os/la carapace des animaux. Ainsi, la physiologie des organismes (vertébré *versus* invertébrés) peut participer à expliquer la variation de l'organotropisme de l'uranium.

## Mobilité et biodisponibilité en milieu marin

### Eaux marines

L'uranium libéré par l'érosion à la surface des continents est apporté à l'océan essentiellement en solution, sous la forme de l'ion uranyle UO<sub>2</sub><sup>2+</sup> [uranium (VI)]. Il est peu réactif vis-à-vis des particules sédimentaires de sorte que son temps de résidence dans l'océan (2 à 4 x10<sup>5</sup> ans ; Ku *et al.*, 1977 ; Chen et Laurence, 1986) dépasse de beaucoup le temps de mélange de l'océan lui-même (ca 10<sup>3</sup> ans). Sa concentration, relativement homogène dans l'ensemble des bassins océaniques, est de l'ordre de 3 µg.L<sup>-1</sup>, soit 37 mBq.L<sup>-1</sup>. Les ions uranyle peuvent se complexer à la matière organique dissoute ; ces complexes peuvent représenter jusqu'à 20 % de la fraction dissoute de l'uranium dans l'eau de mer (Mann et Wong 1993).

### Eaux estuariennes

L'uranium dissous a un comportement conservatif dans de nombreux estuaires : sa concentration évolue en réponse au mélange eau douce – eau de mer, habituellement tracé par la salinité. Des processus d'extraction de l'uranium dissous de la colonne d'eau vers les particules en suspension ont cependant été mis en évidence dans les estuaires de la Delaware et de Chesapeake (Sarin et Church, 1994), du fait de l'association de l'uranium avec des phosphates et des substances humiques, couplée à des déficits en oxygène dissous et en alcalinité, dans la zone de faible salinité.

### Sédiments

Les mécanismes les plus efficaces de piégeage de l'uranium à partir de la colonne d'eau sont rencontrés dans les sédiments riches en matière organique dans lesquels il est réduit de l'état U(VI) à l'état U(IV). L'uranium pénètre dans les eaux interstitielles par diffusion à partir de l'eau sus-jacente ou y est libéré par la dissolution d'enduits d'oxyhydroxydes de fer. L'uranium peut alors s'associer aux sulfures sédimentaires.

La remise en suspension de tels sédiments s'accompagne d'une remobilisation de l'uranium vers l'eau libre par dilution d'eau interstitielle enrichie en uranium (McKee *et al.*, 1987) ou dissolution des phases porteuses (Barnes et Cochran, 1993).

## Végétaux

Le transfert de l'uranium aux végétaux marins montre une variabilité importante au sein d'un même groupe. Ainsi, un facteur de concentration de l'uranium de 270, obtenu en laboratoire, a été rapporté par Hosseini *et al.* (2008) pour le phytoplancton marin. Cette valeur est proche de celle mesurée *in situ* chez les diatomées du Pacifique nord-ouest (213 ; Miyake *et al.*, 1970). Sur les mêmes périodes, d'autres sources préconisent des valeurs inférieures d'un ordre de grandeur : 10 pour Cherry et Shannon (1974) et 20 pour l'AIEA (2004). Chez les macroalgues marines, une dispersion similaire des valeurs de facteurs de concentration est observée, entre 100 (GRNC, 1999 ; AIEA, 2004) ou 120 (Hosseini *et al.*, 2008) et 700 (Holm et Persson, 1980 ; Nilsson *et al.*, 1980). La bioconcentration de l'uranium apparaît en fait variable selon le groupe d'algues. Miyake *et al.* (1970) ont ainsi mesuré des facteurs de concentration de 61, 79 et 248 pour les rhodophycées, les chlorophycées et les phaeophycées, respectivement.

Enfin, un facteur de concentration de l'uranium de 350 a été mesuré chez la phanérogame marine *Heterozostera tasmanica* par Ahsanullah et Williams (1986).

## Animaux

Comme pour les végétaux, des facteurs de concentration variés sont rapportés pour le zooplancton marin, de 5 (Cherry et Shannon, 1974) à 71 (Miyake *et al.* (1970). Selon certaines sources (GRNC, 1999 ; AIEA, 2004 ; INERIS, 2010), les poissons ne concentreraient pas l'uranium quand d'autres auteurs (Hosseini *et al.*, 2008) mentionnent un facteur de concentration de 14. À l'opposé, un certain consensus semble exister pour d'autres groupes animaux. Une valeur de 10 est ainsi recommandée pour les macro-crustacés benthiques (GRNC, 1999 ; AIEA, 2004 ; INERIS, 2010). De même pour les mollusques (hors céphalopodes), un facteur de concentration de 30 est cité (GRNC, 1999 ; AIEA, 2004 ; INERIS, 2010, Hosseini *et al.*, 2008).

## Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes semi-naturels

Ce paragraphe est basé sur la revue de littérature menée au plan international dans le cadre de la révision du guide relatif aux valeurs de paramètres pour la prédiction du transfert des radionucléides dans les environnements terrestres et aquatiques continentaux tempérés, entreprise à l'initiative de l'AIEA (AIEA, 2010).

### Forêts

Il n'y a pas d'information particulière relative à la mobilité et à la biodisponibilité de l'uranium dans les écosystèmes forestiers.

### Écosystèmes arctiques

Il n'y a pas d'information particulière relative à la mobilité et à la biodisponibilité de l'uranium dans les écosystèmes arctiques.

### Écosystèmes alpins

Il n'y a pas d'information particulière relative à la mobilité et à la biodisponibilité de l'uranium dans les écosystèmes alpins.

## Dosimétrie environnementale

Les effets d'une exposition aux rayonnements ionisants sont caractérisés par la quantité d'énergie absorbée dans l'organisme cible, exprimée par un débit de dose ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ ). Son évaluation est obtenue par l'application de coefficients de conversion de dose (DCC,  $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$  par  $\text{Bq}\cdot\text{unité}^{-1}$  de masse ou de volume) aux concentrations de l'élément dans les milieux d'exposition, milieux et/ou organismes ( $\text{Bq}\cdot\text{unité}^{-1}$  de masse ou de volume).

Les DCC caractéristiques de l'uranium 238 ont été déterminés hors filiation et sans pondération en fonction du type de rayonnement (RBE<sup>(1)</sup>) avec le logiciel EDEN (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2006) dans sa version 2.2, en considérant forme, dimension et composition chimique des organismes et de leurs milieux de vie, ainsi que leurs relations géométriques. Les espèces modèles considérées ont été choisies à titre d'illustration.

À l'exception de la fétuque ( $10^{-1}$   $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$  par  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ), l'exposition interne des organismes à l'uranium 238 est généralement caractérisée par des DCC dont l'ordre de grandeur varie de  $10^{-4}$  à  $10^{-3}$   $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$  par  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ .

L'exposition externe est de moindre importance et se caractérise par une variabilité importante des DCC en fonction des organismes, avec des ordres de grandeur allant de  $10^{-10}$  à  $10^{-3}$   $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$  par  $\text{Bq}\cdot\text{unité}^{-1}$  de masse ou de volume.

Pour plus de détails sur la manière de calculer les DCC, consulter la fiche « Dosimétrie environnementale ».

## Toxicité environnementale

### Chimiotoxicité de l'élément

Les données relatives à l'écotoxicité de l'uranium dans les écosystèmes terrestres et aquatiques ont été revues par Sheppard *et al.* (2005) dans l'objectif d'estimer des concentrations prédites sans effet (PNEC) pour les différents types de biota d'intérêt. Ils proposent une PNEC<sub>sol</sub> de  $250 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  pour les plantes terrestres et de  $100 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  pour les organismes du sol. En France, la NQEp<sup>(2)</sup> proposée pour l'uranium en milieu aquatique continental, issue des travaux de l'INERIS, est la somme du bruit de fond géochimique et de la PNEC<sub>eau douce</sub> ( $0,3 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ). L'IRSN a proposé une révision de cette valeur de PNEC en 2010 (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2010), intégrant la spéciation de l'uranium en fonction des propriétés physico-chimiques du cours d'eau. La grille de valeurs ainsi obtenue varie alors pour l'exposition chronique de  $0,3$  à  $3\,510 \mu\text{g}\cdot\text{U}\cdot\text{L}^{-1}$ .

Concernant les effets sur les microorganismes du sol, la plus faible concentration d'effet reportée est de  $5 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  (poids sec de sol) et concerne des bactéries fixatrices d'azote. Des effets indirects sur la respiration du sol ou les taux de décomposition de matière organiques ont également été mis en évidence mais pour des teneurs en U nettement plus élevées (Meyer *et al.*, 1998).

Peu d'informations existent vis-à-vis de la phytotoxicité de l'uranium. Dans les zones très uranifères il a été observé des modifications de pigmentation chez certaines espèces végétales et des bouleversements dans leur croissance. Des effets macroscopiques sont en effet décrits, comme une réduction du rendement de la biomasse des plantes et de la production de graines (Sheppard *et al.*, 2005) ou de l'élongation racinaire (Panda *et al.*, 2001). L'activité photosynthétique est également affectée chez le lichen (Boileau *et al.*, 1985), tandis que du stress oxydant et de la génotoxicité ont été reportés pour diverses espèces de plantes supérieures (Panda *et al.*, 2001 ; Vandenhove *et al.*, 2006 ; Vanhoudt *et al.*, 2008). Les niveaux toxiques restent néanmoins très variables en fonction des espèces végétales, puisque Aery et Jain (1998) reportent un effet sur la production de graines chez *Triticum aestivum* dès  $0,5 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  de sol alors que d'autres études n'observent aucun effet phytotoxique jusqu'à  $1\,000 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  de sol (Sheppard *et al.*, 2005).

Les données relatives aux organismes animaux des écosystèmes terrestres concernent les invertébrés du sol, les collemboles et les vers de terre (Sheppard *et al.*, 2005). La plus faible concentration d'effet reporté concerne le taux de survie et de reproduction dans un sol sableux d'*Onychiurus folsomi* (espèce de collembole consommateur de racines), qui est affecté dès  $92 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  de sol. Les autres organismes testés apparaissent nettement moins sensibles à l'uranium. De façon générale, la toxicité est plus forte sur les sols de type sable fin que sur les sols de type terreau.

Concernant les organismes d'eau douce, plus de 150 données d'écotoxicité aiguë sur algues, cnidaires, crustacés, insectes, mollusques, plantes, poissons ont été recensées dans la littérature pour environ 50 relevant de la caractérisation de l'écotoxicité chronique de l'uranium (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2010). Ces dernières couvrent essentiellement les trois taxons de base algues, crustacés et poissons, auxquels s'ajoutent quelques rares données sur amphibiens, mollusques et cnidaires.

La toxicité de l'uranium dans les algues d'eau douce (*Chorella*) serait pH-dépendante (Franklin *et al.*, 2000). Les concentrations létales pour 50 % de la population exposée ( $\text{CL}_{50}$ ) à 72 h varient ainsi sur un ordre de grandeur, entre  $0,04$  et  $0,3 \text{ mg}\cdot\text{U}\cdot\text{L}^{-1}$ . Chez les plantes supérieures, l'unique  $\text{CL}_{50}$  reportée (Charles

<sup>1</sup> Relative Biological Effectiveness : exprime l'efficacité relative des différents types de rayonnement à produire un même effet biologique.

<sup>2</sup> Norme de qualité environnementale provisoire.

*et al.*, 2006) est de 0,8 mg U.L<sup>-1</sup>. Les concentrations sans effet (NOEC), globalement inférieures, recouvrent cependant partiellement la gamme des CL<sub>50</sub> (0,009 à 0,22 mg U.L<sup>-1</sup>).

Chez les animaux aquatiques, la toxicité chimique de l'ion uranyle diminue avec l'augmentation de la dureté, de l'alcalinité et de la concentration en matières organiques dissoutes de l'eau (Markish *et al.*, 1996). Chez les cladocères, les CL<sub>50</sub> à 24 h varient de 0,41 à 23 mg d'uranium par litre en fonction des espèces, du pH et de la dureté de l'eau utilisée, quand les NOEC s'étagent entre 0,02 et 0,06 mg U.L<sup>-1</sup> (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2010). Chez les poissons, les CL<sub>50</sub> à 96 h s'étendent de 0,7 à 135 mg d'uranium par litre en fonction des facteurs biotiques (espèce, stade de maturité) et abiotiques (température, dureté, pH). Les NOEC varient entre 0,3 et 6,1 mg U.L<sup>-1</sup>. Les symptômes décrivant l'intoxication à l'uranium progressent depuis une augmentation de la ventilation respiratoire, vers une nage désordonnée, une perte d'équilibre, de couleur, des hémorragies au niveau des nageoires puis la mort. L'atteinte branchiale des poissons exposés à des métaux à partir de la voie directe est fréquemment rapportée dans la littérature. La toxicité de l'uranium est également due aux radiations ionisantes de ses isotopes et des produits de leur décroissance radioactive.

## Radiotoxicité de l'isotope radioactif <sup>238</sup>U

L'uranium est un élément chimiotoxique et radiotoxique. Il est toutefois considéré que la toxicité radiologique ne devient prépondérante que pour des formes d'uranium enrichi en isotope 235. Plusieurs études, dont les travaux théoriques récents de Mathews *et al.* (2009) viennent à l'appui de cette idée. La PNEC définie dans cette étude (3,2 µg U.L<sup>-1</sup>) apparaît protectrice sur le plan radiologique pour un écosystème aquatique générique exposé à un uranium appauvri, naturel ou faiblement enrichi après une période de décroissance d'au plus un siècle. À l'opposé, le critère de protection radiologique de 10 µGy.h<sup>-1</sup> ne se révèle protecteur de ce type d'écosystème sur le plan chimique que lors d'une exposition chronique à de l'uranium fortement enrichi en équilibre radioactif.

Émetteur α, l'uranium 238 possède un très faible pouvoir pénétrant (quelques centimètres dans l'air, arrêt par la couche cornée de la peau ou une feuille de papier) à l'origine d'un stress radiatif principalement lié à l'irradiation interne en cas d'incorporation du radionucléide. En tant qu'émetteur α, l'uranium 238 présente cependant la plus grande efficacité biologique parmi les différents types de rayonnements ionisants, qui pourrait être caractérisée chez les mammifères par un RBE de 10, cette valeur étant encore discutée. Les émissions radioactives de ce radioisotope peuvent ainsi interagir dans les cellules directement ou indirectement avec les molécules biologiques. Des dommages à l'ADN, aux protéines et aux lipides dus aux particules alpha émises par l'uranium ont ainsi été observés (Miller *et al.*, 2002). De même, des effets sur poissons (éclosion des œufs, pourcentage de dommages à l'ADN) ont été corrélés à la radiotoxicité de l'uranium (Barillet *et al.*, 2007). Si le rein, organe cible de l'uranium chez les animaux, est considéré comme peu radiosensible, l'action radiotoxique de cet élément s'exercerait préférentiellement sur son deuxième tissu cible, le tissu osseux, qui en est l'organe majeur de fixation à long terme (Legget, 1994).

Les données sur la radiotoxicité de l'uranium ne sont cependant pas suffisantes pour valider pour l'uranium 238 la pertinence du critère seuil de protection des écosystèmes de 10 µGy.h<sup>-1</sup>, définie au plan européen vis-à-vis de l'exposition chronique par irradiation gamma externe.

## En résumé ...

Dans l'environnement continental, la mobilité de l'uranium est d'autant plus importante que les conditions du milieu sont oxydantes et acides. L'uranium reste alors sous forme d'ion uranyle U(VI) dominant à pH acide, forme des complexes avec les hydroxydes, les carbonates ou les ions chlorures ou enrichit la fraction colloïdale. L'adsorption sur des surfaces minérales ou biologiques peut retarder son transport tout comme sa réduction en U(IV).

L'ordre de grandeur des paramètres radioécologiques décrivant les transferts dans les écosystèmes terrestres agricoles est connu.

Dans le cas des écosystèmes aquatiques, la chimiotoxicité aiguë a été évaluée pour différents niveaux trophiques alors que les conséquences d'expositions chroniques à l'uranium dans le contexte de sites miniers ou encore consécutivement à l'utilisation militaire du métal appauvri, sont très mal connues, en particulier le transfert par l'ingestion chez les organismes animaux. L'aspect cinétique des transferts n'est pas connu. La radiotoxicité se caractérise par une dominance de l'exposition interne, liée à l'internalisation d'un radionucléide émetteur α.

## Récapitulatif des méthodes de mesure

	Analyse	Limite de détection <sup>(1)</sup> ou de quantification <sup>(2)</sup>	Incerti- tude	Délai minimal d'analyse pour 1 échantillon	Prise d'essai
Fluorimétrie	U pondéral	1 µg.L <sup>-1</sup>	20 %	48 heures	10 mL
ICP-AES	U pondéral	10 à 100 µg.L <sup>-1</sup> selon le système de nébulisation	20 %	24 heures	10 mL
Spectro- métrie gamma	U isotopique	10 Bq.L <sup>-1</sup> ou kg <sup>-1</sup>	10 %	24 heures	500 mL
Radiochimie + Spectro- métrie alpha	U isotopique	0,01 Bq.L <sup>-1</sup> ou kg <sup>-1</sup> <sup>238</sup> U et <sup>234</sup> U Soit environ 1 µg.L <sup>-1</sup> ou kg <sup>-1</sup>	<sup>238</sup> U 15 % <sup>235</sup> U 15 % <sup>234</sup> U 15 %	4 jours de radiochimie + 3 jours de comptage	500 mL d'eau 10 g de sol ou sédiment (5 g sec) 100 g échantillon biologique (5 g de cendre)
Radiochimie + ICP-MS	U isotopique	U <sub>Tot</sub> : 0,8 - 4 ng.L <sup>-1</sup> <sup>238</sup> U : 0,01 - 0,05 mBq.L <sup>-1</sup> <sup>236</sup> U : 0,007 mBq.L <sup>-1</sup>	<sup>238</sup> U 11 % <sup>235</sup> U 11 % <sup>234</sup> U 15 %	1 jour de radiochimie + 30 min de mesure	25 mL
	Eaux, liquides	<sup>235</sup> U : 0,0005 - 0,002 mBq.L <sup>-1</sup> <sup>234</sup> U : 0,7 mBq.L <sup>-1</sup>			
	U isotopique	U <sub>Tot</sub> : 80 - 800 ng.kg <sup>-1</sup> <sup>238</sup> U : 1 - 10 mBq.kg <sup>-1</sup> <sup>236</sup> U : 0,2 - 1 mBq.kg <sup>-1</sup>	<sup>238</sup> U 11 % <sup>235</sup> U 11 % <sup>234</sup> U 15 %	4 jours de radiochimie (hors étape de calcination) + 30 min de mesure	0,5 g - 1 g cendre
	Matrices solides	<sup>235</sup> U : 0,05 - 0,5 mBq.kg <sup>-1</sup> <sup>234</sup> U : 10 - 100 mBq.kg <sup>-1</sup>			

(1) Limites de détection pour les mesures spectrométries gamma et alpha.

(2) Limites de quantification pour les mesures par fluorimétrie, ICP-AES et ICP-MS.

## Paramètres radioécologiques usuels : milieu terrestre

### Coefficient de distribution eau-sol Kd (Bq.kg<sup>-1</sup> de sol sec par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)

Tous sols	2,0 x 10 <sup>2</sup>
Minéral	1,8 x 10 <sup>2</sup>
Organique (> 20 % de M.O.)	1,2 x 10 <sup>3</sup>
Cofacteur pH (sol) :	
pH < 5	7,1 x 10 <sup>1</sup>
5 < pH < 7	7,4 x 10 <sup>2</sup>
pH > 7	6,5 x 10 <sup>1</sup>

(AIEA, 2010)

Échelle comparative

### Facteur de transfert foliaire (Bq.kg<sup>-1</sup> de végétal sec par Bq.m<sup>-2</sup>)

Aucune valeur

Facteur de transfert racinaire ( $\text{Bq.kg}^{-1}$  de végétal sec par  $\text{Bq.kg}^{-1}$  de sol sec)

<b>Céréales (grains)</b>	
Environnement tempéré	$6,2 \times 10^{-3}$
Environnement tropical	$1,8 \times 10^{-2}$
<b>Céréales</b>	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	$2,7 \times 10^{-2}$
Environnement tropical (plante entière)	$4,6 \times 10^{-2}$
<b>Maïs (grain)</b>	
Environnement tempéré	$1,5 \times 10^{-2}$
Environnement tropical	$8,7 \times 10^{-2}$
<b>Maïs</b>	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	$7,8 \times 10^{-3}$
Environnement tropical (plante entière)	$9,6 \times 10^{-1}$
<b>Légumes feuilles (feuilles)</b>	
Environnement tempéré	$2,0 \times 10^{-2}$
Environnement tropical	$4,8 \times 10^{-2}$
<b>Autres légumes (fruits, bourgeons, baies, têtes)</b>	
Environnement tempéré	$1,5 \times 10^{-2}$
Environnement tropical	$4,4 \times 10^{-2}$
<b>Autres légumes</b>	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	$5,3 \times 10^{-2}$
Environnement tropical (plante entière)	$6,2 \times 10^{-1}$
<b>Légumineuses (graines et gousses)</b>	
Environnement tempéré	$2,2 \times 10^{-3}$
Environnement tropical	$3,8 \times 10^{-2}$
<b>Légumineuses</b>	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	$6,4 \times 10^{-2}$
Environnement tropical (plante entière)	$8,5 \times 10^{-1}$
<b>Légumes racines (racines)</b>	
Environnement tempéré	$8,4 \times 10^{-3}$
Environnement tropical	$4,7 \times 10^{-2}$
<b>Légumes racines (tige et parties aériennes)</b>	
Environnement tempéré	$2,8 \times 10^{-2}$
Environnement tropical	$1,7 \times 10^{-1}$
<b>Tubercules (tubercules)</b>	
Environnement tempéré	$5,0 \times 10^{-3}$
Environnement tropical	$2,0 \times 10^{-2}$
<b>Tubercules (tige et parties aériennes)*</b>	$1,9 \times 10^{-1}$
<b>Plantes aromatiques</b>	
Environnement tempéré	$3,6 \times 10^{-2}$
Environnement tropical (feuilles)	$7,8 \times 10^{-3}$
Environnement tropical (fruits)	$4,9 \times 10^{-2}$
<b>Tournesol (feuilles)*</b>	$7,1 \times 10^{-2}$
<b>Tournesol (grain)*</b>	$1,5 \times 10^{-2}$
<b>Herbes (graminées),</b>	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	$1,7 \times 10^{-2}$
Environnement tropical (plante entière)	$6,4 \times 10^{-1}$
<b>Prairie naturelle (tige et parties aériennes)*</b>	$4,6 \times 10^{-2}$
<b>Fourrage (légumineuse ; tige et parties aériennes)*</b>	$1,5 \times 10^{-2}$
<b>Riz (environnement non spécifié)</b>	$2,43 \times 10^{-4}$

(AIEA, 2010)

Échelle comparative

\*: Environnement tempéré

Facteur de transfert aux produits d'origine animale (j.kg<sup>-1</sup> ou j.L<sup>-1</sup>)

Lait de vache	1,8 x 10 <sup>-3</sup>
Lait de chèvre	1,4 x 10 <sup>-3</sup>
Viande de bœuf	3,9 x 10 <sup>-4</sup>
Viande de porc	4,4 x 10 <sup>-2</sup>
Viande de volailles	7,5 x 10 <sup>-1</sup>
Œufs	1,10 <sup>0</sup>

(AIEA, 2010)

Échelle comparative

## Facteur de transfert par transformation alimentaire

Aucune valeur
---------------

## Paramètres radioécologiques usuels : eaux douces

Coefficient de distribution eau-MES Kd (Bq.kg<sup>-1</sup> de solide sec par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)

Valeur générale	5,0 x 10 <sup>1</sup> (2,0 x 10 <sup>1</sup> à 1,0 x 10 <sup>3</sup> )
Conditions oxydantes et acides	2,0 x 10 <sup>1</sup>
Conditions réductrices	1,0 x 10 <sup>5</sup>

(Onishi *et al.*, 1981 ; AIEA, 1994 ; AIEA, 2010)

Échelle comparative

Facteur de concentration dans les végétaux (Bq.kg<sup>-1</sup> de végétal frais par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)

Phytoplancton ( <i>Scenedesmus</i> )	1,0 x 10 <sup>2</sup> à 1,0 x 10 <sup>3</sup>
Algues	1,2 x 10 <sup>2</sup>
Myriophylle	2,9 x 10 <sup>3</sup>
Plantes supérieures en général	1,0 x 10 <sup>3</sup>
Plantes consommables	2,1 x 10 <sup>2</sup> (9,1 x 10 <sup>1</sup> – 5,2 x 10 <sup>2</sup> )

(Pibril et Marvan, 1976 ; AIEA, 2010)

Échelle comparative

Facteur de concentration dans les animaux (Bq.kg<sup>-1</sup> d'animal frais par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)

<b>Invertébrés</b>	1,7 x 10 <sup>2</sup>
Chironome, éphémère	5,0 x 10 <sup>2</sup>
Daphnies	4,8 x 10 <sup>1</sup>
Bivalve	
<i>Corbicula fluminea</i>	1,6 x 10 <sup>2</sup>
Anodonte	1,8 x 10 <sup>2</sup>
<b>Vertébrés</b>	
Poissons :	
organisme entier	2,4 x 10 <sup>0</sup>
muscle	9,6 x 10 <sup>-1</sup>

(Kimura *et al.*, 1994 ; Labrot *et al.*, 1996 ; Ribera *et al.*, 1996 ; Simon et Garnier-Laplace, 2004 ; AIEA, 2010)

Échelle comparative



**Facteur de concentration dans les animaux (Bq.kg<sup>-1</sup> d'animal frais par Bq.kg<sup>-1</sup> de sédiment)**

Invertébrés	1,7 x 10 <sup>-2</sup>
-------------	------------------------

(AIEA, 2010)

**Facteur de transfert trophique (Bq.kg<sup>-1</sup> de prédateur frais par Bq.kg<sup>-1</sup> de proie fraîche)**

<b>Invertébrés</b> Écrevisse ( <i>Orconectes limosus</i> )/ Bivalve ( <i>Corbicula fluminea</i> )	3,0 x 10 <sup>-2</sup> à 2,2 x 10 <sup>-1</sup>
<b>Vertébrés</b> Poissons ( <i>Danio rerio</i> )/aliment artificiel	1,3 x 10 <sup>-3</sup> à 5,2 x 10 <sup>-3</sup>

(Simon et Garnier-Laplace, 2005 ; Simon *et al.*, 2010)**Paramètres radioécologiques usuels : milieu marin****Coefficient de distribution eau-sédiment Kd (Bq.kg<sup>-1</sup> de solide sec par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)**

Sédiments côtiers <sup>(1)</sup>	1 x 10 <sup>3</sup>
Sédiments océaniques profonds <sup>(2)</sup>	5 x 10 <sup>2</sup>
Sédiments des marges océaniques <sup>(2)</sup>	1 x 10 <sup>3</sup>

<sup>(1)</sup> GRNC, 1999 ; <sup>(2)</sup> AIEA, 2004

Échelle comparative

**Facteur de concentration (Bq.kg<sup>-1</sup> de végétal frais par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)**

Phytoplancton	2 x 10 <sup>1</sup>
Macro-algues <sup>(1,2)</sup>	1 x 10 <sup>1</sup>

<sup>(1)</sup> AIEA, 2004 ; <sup>(2)</sup> GRNC, 1999

Échelle comparative

**Facteur de concentration (Bq.kg<sup>-1</sup> d'animal frais par Bq.L<sup>-1</sup> d'eau)**

Crustacés <sup>(1,2)</sup>	1 x 10 <sup>1</sup>
Mollusques <sup>(1)</sup>	3 x 10 <sup>1</sup>
Mollusques (hors céphalopodes) <sup>(2)</sup>	3 x 10 <sup>1</sup>
Zooplancton <sup>(2)</sup>	3 x 10 <sup>1</sup>
Poissons <sup>(1,2)</sup>	1 x 10 <sup>0</sup>

<sup>(1)</sup> GRNC, 1999 ; <sup>(2)</sup> AIEA, 2004

Échelles comparatives

## Paramètres radiotoxicologiques

### Milieu terrestre

Coefficients de conversion de dose (DCC, <sup>238</sup>U), exprimés en poids frais

Espèce modèle	DCC interne ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ )	DCC externe ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ sol)
Lombric	$2,25 \times 10^{-3}$	$7,08 \times 10^{-6}$
Escargot	$2,26 \times 10^{-3}$	$6,88 \times 10^{-8}$
Mésange	$2,26 \times 10^{-3}$	nd*
Lapin	$2,26 \times 10^{-3}$	$2,11 \times 10^{-9}$
Fétuque	$2,99 \times 10^{-1}$	$1,90 \times 10^{-6}$

\*nd : DCC non déterminable en raison de la distance

### Eaux douces

Coefficients de conversion de dose (DCC, <sup>238</sup>U), exprimés en poids frais

Espèce modèle	DCC interne ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ )	DCC externe	
		Sédiment ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ )	Eau ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ )
Algue	$1,23 \times 10^{-4}$	nd*	$1,72 \times 10^{-3}$
Daphnie	$2,23 \times 10^{-3}$	nd	$3,54 \times 10^{-5}$
Chironome	$2,21 \times 10^{-3}$	$4,46 \times 10^{-5}$	$5,83 \times 10^{-9}$
Gardon	$2,26 \times 10^{-3}$	nd	$1,29 \times 10^{-6}$
Carpe commune	$2,26 \times 10^{-3}$	$2,04 \times 10^{-9}$	$3,38 \times 10^{-7}$
Myriophylle	$2,42 \times 10^{-3}$	$6,13 \times 10^{-8}$	$4,05 \times 10^{-8}$

\*nd : DCC non déterminable en raison de la distance

### Eaux marines

Coefficients de conversion de dose (DCC, <sup>238</sup>U), exprimés en poids frais

Espèce modèle	DCC interne ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ )	DCC externe	
		Sédiment ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ )	Eau ( $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ )
Phytoplancton	$1,25 \times 10^{-3}$	nd*	$1,11 \times 10^{-3}$
<i>Fucus</i> (touffe)	$2,26 \times 10^{-3}$	$4,38 \times 10^{-10}$	$2,28 \times 10^{-7}$
Zooplancton	$2,25 \times 10^{-3}$	nd	$1,26 \times 10^{-5}$
Homard	$2,26 \times 10^{-3}$	$2,65 \times 10^{-9}$	$4,67 \times 10^{-7}$
Plie	$2,26 \times 10^{-3}$	$6,54 \times 10^{-9}$	$1,01 \times 10^{-6}$
Maquereau	$2,26 \times 10^{-3}$	nd	$8,21 \times 10^{-7}$

nd\* : DCC non déterminable en raison de la distance

## Bibliographie succincte

- Aery NG, Jain GS (1998). Influence of uranium on the growth of wheat. *J Environ Biol*, **19**: 15-23.
- AFNOR (2003a). Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eaux - Partie 1 : mesurage de la concentration de l'uranium dans l'eau par fluorimétrie (indice de classement : NF M 60-805-1). Norme NF M60-805-1,
- AFNOR (2003b). Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eaux - Partie 2 : mesurage de la concentration de l'uranium dans l'eau par spectroscopie d'émission atomique avec plasma couplé par induction (indice de classement : NF M 60-805-2). Norme NF M60-805-2.
- AFNOR (2005a). Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eaux - Partie 5 : Mesurage de l'activité et de la concentration de l'uranium dans l'eau par spectrométrie alpha (indice de classement : NF M 60-805-5) Norme NF M-60-805-5
- AFNOR (2005b). Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eaux - Partie 4 : Mesurage de l'uranium dans l'eau par spectroscopie de masse avec plasma couplé par induction (indice de classement : NF M 60-805-4). Norme NF 60-805-4.
- AIEA (2010). *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments*. Technical report series n° 472, Vienne, Autriche.
- AIEA (2004) Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment – *Technical Reports Series n° 422*. Vienna, Austria.
- Ahsanullah M, Williams AR (1986). Effect of uranium on growth and reproduction of the amphipod. *Alorchestes compressa*. *Marine Biology*, **93**: 459–464.
- Andersson PS, Porcelli D, Gustafsson O, Ingri J, Wasserburg GJ (1998). Colloid and particle transport of U isotopes in the low salinity zone of a stable estuary. *Mineral Mag*, **62A**: 57-58.
- Augeray C, Boulet B, Loyer J (2008). Analyse de l'uranium pondéral et de l'uranium isotopique dans un échantillon d'eau - Application aux échantillons prélevés dans le cadre de l'incident SOCATRI- Bilan des méthodes disponibles au DEI/STEME. IRSN, note technique DEI/STEME n° 08-006.
- Barillet S, Adam C, Palluel O, Devaux A (2007). Bioaccumulation, oxidative stress and neurotoxicity in *Danio rerio* exposed to different isotopic compositions of uranium. *Environ Toxicol Chemi*, **26**(3):497-505.
- Barnes CE, Cochran JK (1993). Uranium geochemistry in estuarine sediments: Controls on removal and release processes. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **57**: 555–569.
- Beaugelin-Seiller K, Février L, Garnier-Laplace J, Gilbin R (2010). Proposition de valeurs de PNEC chronique et aiguë pour l'uranium: valeurs génériques et conditionnelles aux domaines physico-chimiques des eaux douces considérées. IRSN/DEI, rapport SECRE/2010-038, 69 p.
- Beaugelin-Seiller K, Jasserand F, Garnier-Laplace J, Gariel JC (2006). Modelling the radiological dose in non-human species : principles, computerization and application. *Health Phys*, **90**: 485-493.
- Bird GA, Evenden WG (1996). Transfer of <sup>60</sup>Co, <sup>65</sup>Zn, <sup>95</sup>Tc, <sup>134</sup>Cs and <sup>238</sup>U from water to organic sediment. *Water, Air, Soil Pollut*, **86**: 251-61.
- Boileau LJR, Nieboer E, Richardson DHS (1985). U accumulation in the lichen *Cladonia rangifera*. Part II. Toxic effects of cationic, neutral and anionic forms of the uranyl anion. *Can J Botany*, **63**: 390-397.
- Bonin B, Blanc PL (2001). L'uranium dans le milieu naturel, des origines jusqu'à la mine. In : Métivier H, *L'uranium, de l'environnement à l'homme*, (EDP Sciences Ed.) IRSN Collection.
- Bowen HJM (1979). *Environmental chemistry of the elements*. Academic Press.
- Charles AL, Markich SJ, Ralph P (2006). Toxicity of uranium and copper individually, and in combination, to a tropical freshwater macrophyte (*Lemna aequinoctialis*). *Chemosphere* **62**: 1224-1233.
- Chen JH, Laurence ER (1986). <sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U and <sup>232</sup>Th in seawater. *Earth and Planetary Sciences Letters*, **80** (3-4): 241-251.
- Cherry RD, Shannon LV (1974) Alpha radioactivity of marine organisms. *Atomic Energy Review*, **12**: 3–45.
- Clulow FV, Davé NK, Lim TP, Avadhanula R (1998). Radionuclides (Lead-210, Polonium-210, Thorium-230, and -232) and Thorium and Uranium in water, sediments, and fish from lakes near the city of Elliot lake, Ontario, Canada. *Environ Pollu*, **99**: 199-213.

- Cochran JK (1982). The oceanic chemistry of U- and Th-series nuclides. In: M. Ivanovich and R.S. Harmon, Editors, *Uranium Series Disequilibria: Applications to Environmental Problems*, Clarendon, 384-430.
- Cooley HM, Klaverkamp JF (2000). Accumulation and distribution of dietary uranium in lake whitefish (*Coregonus clupeaformis*). *Aquat Toxicol*, **48**: 477-497.
- Commission Européenne (2009). Nucleonica web driven nuclear science. (application accessible sur Internet, <http://www.nucleonica.net/Application/CommunityPortal.aspx>, page consultée le 16 décembre 2009).
- Cuney M, Leroy J, Pagel M (1992). *L'uranium*, collection « Que sais-je ? » Presses Universitaires de France.
- De Vos W et Tarvainen T (2006). Geochemical Atlas of Europe. Part 2 – Interpretation of Geochemical Maps, Additional tables, Figures, Maps and Related Publications (accessible en ligne <http://www.gsf.fi/publ/foregsatlas/part2.php>, page consultée le 9 mars 2001).
- Fortin C, Denison FH, Garnier-Laplace J (2007). Metal-phytoplankton interactions: modelling the effects of competing ions ( $H_+$ ,  $Ca_{2+}$ ,  $Mg_{2+}$ ) uranium uptake. *Envir Toxicol Chem*, **26**: 242-248.
- Franklin NM, Stauber JL, Markich SJ, Lim RP (2000). pH-dependent toxicity of copper and uranium to a tropical freshwater alga (*Chlorella* Sp). *Aquat Toxicol*, **48**: 275-289.
- GRNC – Groupe Radioécologique Nord Cotentin (1999) Modélisation du transfert des radionucléides dans l'environnement – Rapport final, volume 3. IRSN, Fontenay aux Roses.
- Gueniot B, Munier-Lamy C, Berthelin J (1988). Geochemical behavior of uranium in soils, part I. Influence of pedogenetic processes on the distribution of uranium in aerated soils. *J Geochem Explor*, **31**: 21-37.
- Holm E, Persson RBR (1980) Behavior of natural (Th, U) and artificial (Pu, Am) actinides in coastal waters. Marine Radioecology – Proceedings of the 3<sup>rd</sup> NEA seminar, Tokyo, 1979. OECD, Paris.
- Hosseini A Thørring H, Brown JE, Saxén R, Illus E (2008). Transfer of radionuclides in aquatic ecosystems – Default concentration ratios for aquatic biota in the ERICA Tool. *J Environ Radioactiv* **99**: 1408-1429.
- INERIS – Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (2010) Fiche de données toxicologiques et environnementales – Uranium (disponible sur <http://www.ineris.fr/substances/fr/substance/1887>, page consultée le 27/08/2010).
- IRSN (2009). Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2009. Synthèse des résultats des réseaux de surveillance de l'IRSN. Document IRSN (disponible sur [http://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports\\_expertise/Documents/environnement/IRSN\\_surveillance\\_France\\_2009.pdf](http://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/Documents/environnement/IRSN_surveillance_France_2009.pdf) )
- ISO - Organisation Internationale de Normalisation (2007). Qualité de l'eau - Application de la spectrométrie de masse avec plasma à couplage inductif (ICP-MS) - Partie 1 : lignes directrices générales (Indice de classement : T90-163). Norme NF EN ISO 17294-1 36p.
- Kimura K, Watabe T, Shimizu M, Iijima T, Ishikawa M, Okabayashi H (1994). *Concentration factors of radionuclides in freshwater organisms*. Radioactive Waste Management Center, Environmental parameters series 3, RWMC-94-P-15, 97 p.
- Knauss K, Ku T L (1983). The elemental composition and decay-series radionuclide content of plankton from the East Pacific. *Chem Geol*, **39**: 125-145.
- Ku TL, Knauss KG, Mathieu GG (1977). Uranium in open oceans: Concentrations and isotopic composition. *Deep Sea Res.*, **24**: 1005-1017.
- Labrot F, Narbonne JF, Ville P, Saint Denis M, Ribera D (1999). Acute Toxicity, Toxicokinetics, and Tissue Target of Lead and Uranium in the Clam *Corbicula fluminea* and the Worm *Eisenia fetida* : Comparison with the Fish *Brachydanio rerio*. *Arch Environ Contam Toxicol*, **36**: 167-178.
- Lambrechts A, Foulquier L, Garnier-Laplace J (1992). Natural radioactivity in the aquatic components of the main French rivers. *Radiat Prot Dosim*, **45**: 253-6.
- Legget RW (1994). Basis for the ICRP 's age-specific biokinetic model for uranium. *Health Phys* **67**(6):589-610.
- Le Roux G (2007). Radionucléides naturels en France. Approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique ( $^{40}K$  et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux. IRSN/DEI, rapport SESURE/2007-21, 45 p.
- Mann DK, Wong GTF (1993) "Strongly bound" uranium in marine waters: Occurrence and analytical problems. *Mar Chem*, **42**: 25-37.

- 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**: 6684-6690.
- McKee BA, DeMaster DJ, Nitrouer CA (1987). Uranium geochemistry on the Amazon shelf: Evidence for uranium release from bottom sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **51**: 2779-2786.
- Meyer MC, Paschke MW, Melendon T, Price D (1998). Decreases in soil microbial function and functional diversity in response to depleted uranium. *J Environ Qual*, **27**: 1306-1311.
- Miller AC, Stewart M, Brooks K, Shi L, Page N (2002). Depleted uranium-catalyzed oxidative DNA damage: absence of significant alpha particle decay. *J Inorg Biochem*. **91**(1): 246-252.
- Miyake Y, Sugimura Y, Mayeda M (1970). The uranium content and the activity ratio  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  in marine organisms and seawater in the western North Pacific. *Journal of the Oceanographical Society of Japan*, **26**: 123-129.
- Mordtvet JJ (1996). Plant and soil relationships of uranium and thorium decay series radionuclides. A review. *J Environ Qual*, **23**: 643-650.
- Moulin V, Tits J, Ouzounian G (1992). Actinide speciation in the presence of humic substances in natural water conditions. *Radiochim Acta*, **58/59**: 179.
- Nillson M, Dahlgaard H, Edgren M, Holm E, Mattsson S, Notter M (1980). Radionuclides in Fucus from inter-Scandinavian waters. Proceedings of the International Symposium on: *Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment*, International Atomic Energy Agency, Vienne, IAEA-SM-248, pp. 107-111.
- Onishi Y, Serne RJ, Arnold EM, Cowan CE, Thompson FL (1981). *Critical review: radionuclide transport, sediment transport and water quality mathematical modeling and radionuclide adsorption/desorption mechanisms*. Pacific Northwest Laboratory, Richland.
- Panda BB, Panda KK, Patra J, Sahu GK, Mitra RK (2001). Evaluation of phytotoxicity and genotoxicity of uranyl nitrate in *Allium* assay system. *Indian J Exp Biol*, **39**: 57-62.
- Papachristodoulou C A, Assimakopoulos PA, Patronis NE, Ioannides KG (2003). Use of HPGe  $\gamma$ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils - C.A. Papachristodoulou, - J Environm. Radioactiv. **64**: 195-203.
- Paquet F, Adam-Guillermin C, Ansoberlo E, Beaugelin-Seiller K, Carrière M, Dublineau I, Taran F, Vidaud C (2009). « Uranium », in Chapitre 23, Toxicologie nucléaire environnementale et humaine. Ménager M.T., Garnier-Laplace J., Goyffon M. (Coord). Editions Tex&Doc – Lavoisier, 411-443.
- Paulin R (1997). Radionucléides naturels. In: *Toxiques nucléaires*. P. Galle, 2<sup>e</sup> édition, Masson, pp. 3-22
- Picat P, Calmet D, Louvat D, Vray F, Lemaître N, Linden G, Barbey P, Pigree G, Bourcer T, Levy F, Le Bar S, Baron Y, Delacroix D, Panaïva E., De Bruyne T, Hervé JY, Beguinel P, Cabanne N, De Paepe A, Santucci C, Prot T, Matray JL, Tillie JL (2002). Radioactivité d'origine naturelle dans l'environnement en France : niveaux non perturbés par l'homme. *Radioprotection* vol. 37, n° 3 pages 283-327.
- Porcelli D, Andersson PS, Wasserburg GJ, Ingri J, Baskaran M (1997). The importance of colloids and mires for the transport of uranium isotopes through the Kalix River watershed and Baltic Sea. *Geochim Cosmochim Acta*, **61**: 4095-4113.
- Pribil S, Marvan P (1976). Accumulation of uranium by the chlorococcal alga *Scenedesmus quadricauda*. *Arch Hydrobiol*, **49**: 214-25.
- Radgnarsdottir KV, Charlet L (2000). Uranium behavior in natural environment. In: *Environmental Mineralogy: Microbial Interactions, Antropogenic Influences, Contaminated Lands And Waste Management*. Mineralogical Society of Great Britain & Ireland, Book Series 9. pp. 333-377.
- Ribera D, Labrot F, Tisnerat G, Narbonne JF (1996). Uranium in the environment: occurrence, transfer, and biological effects. *Rev Environ Contam Toxicol*, **146**: 53-89.
- Salpateur I, Angel JM (2010). Valeurs de référence pour les teneurs en éléments traces dans les eaux de rivière et les sédiments, obtenues en France dans le cadre du nouvel Atlas géochimique européen (I). *Environnement, Risques & Santé*, **9**(2) : 121-135.
- Sarin MM, Church TM (1994). Behaviour of uranium during mixing in the delaware and chesapeake estuaries. *Estuar Coast Shelf S*, **39**-6, 619-631
- Sheppard SC, Sheppard MI, Gallerand MO, Sanipelli B (2005). Derivation of ecotoxicity thresholds for uranium. *J Environ Radioactiv*, **79**: 55-83.

Simon O, Garnier-Laplace J (2004). Kinetic analysis of uranium accumulation in the bivalve *Corbicula fluminea*: effect of pH and direct exposure levels". *Aquat Toxicol*, **68**: 95-108.

Simon O, Garnier-Laplace J (2005). Laboratory and field assessment of uranium trophic transfer efficiency in the crayfish *Orconectes limosus* fed the bivalve *C. fluminea*. *Aquat Toxicol*, **74**: 372-383.

Simon O, Mottin E, Geffroy B, Hinton TG (2010). The effects of dietary uranium on reproductive endpoints (fecundity, survival, reproductive success) of the fish, *Danio rerio*. *Environ Toxicol Chem*, **30**: 220-225

Szefer P (1987). Concentration of uranium and thorium by some Baltic Seaweeds and lake plants. *Mar. Poll. Bull.*, **18** (8): 439-442.

Szefer P, Wenne R (1987). Concentration of uranium and thorium in molluscs inhabiting Gdansk bay, Baltic Sea. *Sci Total Environ*, **65**: 191-202.

Takata H, Aono T, Tagami K, Uchida S (2011). Determination of naturally occurring uranium concentrations in seawater, sediment, and marine organisms in Japanese estuarine areas. *J Radioanal Nucl Chem*, **287**: 795-799.

UNSCEAR (2000). Sources and Effects of Ionizing Radiation. vol 1 (sources) , annexe B (exposure from natural radiation sources), 74 p. UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Vienne. (Document disponible en ligne à l'adresse suivante : [http://www.unscear.org/unscear/publications/2000\\_1.html](http://www.unscear.org/unscear/publications/2000_1.html), page consultée le 9 mars 2011).

Vandenhove H, Cuypers A, Van Hees M, Koppen G, Wannijn J (2006). Oxidative stress reactions induced in beans (*Phaseolus vulgaris*) following exposure to uranium. *Plant Physiol Bioch*, **44**: 795-805.

Vanhoudt N, Vandenhove H, Smeets K, Remans T, Van Hees M, Wannijn J, Vangronsweld J, Cuypers A, (2008). Effects of uranium and phosphate concentrations on oxidative stress related responses induced in *Arabidopsis Thaliana*. *Plant Physiol Bioch*, **46**: 987-996.

Wagner JF, Vian A (1999). Analyse de l'uranium et des éléments transuraniens. Techniques de l'ingénieur. (page consultée le 6 août 2010, <http://www.techniques-ingenieur.fr/book/p3720/analyse-de-l-uranium-et-des-elements-transuraniens.html>)