



FICHE RADIONUCLÉIDE

Cl36 et environnement

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 : C. Colle, C. Adam

Vérification : F. Bréchnignac

Date de rédaction : 08/01/02

Caractéristiques

Chimiques

De numéro atomique $Z = 17$, le chlore appartient à la famille des halogènes. C'est un élément très électronégatif et très réactif, qui intervient comme matière première dans plus de 50 % des processus de production de l'industrie chimique et plus de 85 % de ceux de l'industrie pharmaceutique. Il est présent naturellement sous forme de sel, constituant ainsi 3 à 4 % des mers et océans.

Nucléaires

Il possède 14 isotopes dont les masses s'échelonnent de 32 à 43. À l'exception du chlore 35 et du chlore 37, tous sont radioactifs. D'un point de vue radioécologique, le seul isotope à prendre en considération est le chlore 36, les autres isotopes ayant des périodes radioactives inférieures à une heure. Le ^{36}Cl se désintègre à 98 % par émission β^- en argon 36, stable, et à 2 % par capture électronique en soufre 36, stable.

	^{36}Cl	
Période radioactive	$3,02 \times 10^5$ ans	
Activité massique	$1,22 \times 10^9$ Bq.g ⁻¹	
Émission(s) principale(s) par désintégration (rendement d'émission %)	β^-	$E_{\max} = 0,71$ MeV (98 %)
	β^+	$E_{\max} = 1,14$ MeV (2 %)

(Nuclides 2000, 1999)

Origines

Naturelle

Dans l'atmosphère et la couche superficielle du globe, la spallation par les rayons cosmiques de l'argon 40, du potassium et du calcium ainsi que l'activation neutronique de l'argon 36 sont à l'origine d'environ 15 tonnes de ^{36}Cl dont 70 % se trouveraient dans les océans.

Dans le sous-sol l'activation du chlore 35, sous l'action des neutrons issus de la désintégration des éléments des chaînes de décroissance du l'uranium et du thorium, conduit à la formation de chlore 36. Les estimations des quantités produites par cette réaction sont très imprécises et fluctuent de 300 à 3 000 tonnes (Bentley *et al.*, 1986).

Artificielle

- Explosions nucléaires atmosphériques

Pendant la période 1945-1962, les essais nucléaires atmosphériques ont libéré dans l'environnement de faibles quantités de ^{36}Cl issus de l'activation du chlore 35 d'origine marine. La quasi totalité s'est déposée au sol sur l'ensemble de la planète (Bentley *et al.*, 1986).

- Genèse au sein des réacteurs nucléaires

Du chlore 36 se forme dans le cœur des réacteurs par activation du chlore stable présent à l'état d'impuretés dans le combustible. Ce chlore est susceptible d'être rejeté dans l'environnement sous forme d'effluent gazeux lors des opérations de retraitement et il est donc présent dans les déchets (Sheppard *et al.*, 1996).

Concentrations dans l'environnement et métrologie

Le chlore stable présent dans les sols provient essentiellement des mers et des dépôts continentaux de roches salines (potasse d'Alsace par exemple). Cette source fournit des sels de type chlorures (Na, K, Ca, Mg) qui sont très solubles et qui ont donc une grande mobilité. Dans les sols, les concentrations en chlore d'origine marine varient de 8 à 1800 $\mu\text{g.g}^{-1}$ de sol sec en fonction de l'éloignement de la mer, avec une valeur moyenne de 100 $\mu\text{g.g}^{-1}$ de sol sec. En conditions moyennes, les apports annuels par les pluies de chlore en provenance des mers sont de l'ordre de 20 kg.ha^{-1} . Le chlore est présent dans tous les végétaux, en quantités variant avec les espèces et les conditions du milieu. Dans le milieu terrestre, une même espèce contient d'autant plus de chlore qu'elle croît près de la mer, et d'autant moins qu'elle est cultivée en altitude. La plage des concentrations enregistrées en chlore dans des plantes terrestres est donc plutôt large. Toutefois, une moyenne de 5 000 $\mu\text{g.g}^{-1}$ sec peut être avancée. Dans les eaux douces, la concentration moyenne en chlore stable est de 7 mg.l^{-1} .

En ce qui concerne les concentrations en ^{36}Cl , les données existantes sont relatives au milieu aquatique et au continent américain. Ainsi, d'après Kotzer *et al.* (1998), les concentrations en ^{36}Cl varient de $4,4 \times 10^{-6}$ à $1,5 \times 10^{-3}$ Bq.l^{-1} dans les nappes phréatiques. Bentley *et al.* (1986) ont mesuré le ^{36}Cl dans les eaux de surface. Ces mesures, réalisées après la période des tirs nucléaires atmosphériques, montrent que les concentrations en ^{36}Cl varient de 3×10^{-6} à $1,2 \times 10^{-4}$ Bq.l^{-1} dans les rivières et sont de l'ordre de 2×10^{-7} Bq.l^{-1} dans l'eau de pluie.

Le ^{36}Cl se mesure aisément par scintillation liquide.

Mobilité et biodisponibilité en milieu terrestre

Sols

Le chlore est extrêmement mobile dans les sols où il est essentiellement présent sous forme d'ion chlorure Cl^- (Coughtrey *et al.*, 1983 ; Bentley *et al.*, 1986) et son K_d est voisin de zéro. Son comportement semble être affecté par les hydroxydes de fer et d'aluminium et par la matière organique avec laquelle il formerait des complexes. Il n'y a pas de données concernant la capacité des sols à absorber ou à retenir le chlore gazeux.

Végétaux

Le chlore est un oligo-élément principalement présent à l'état ionique dans les plantes, mais également sous forme organique, notamment couplé à des enzymes intervenant dans les mécanismes de la photosynthèse. Il intervient également dans d'autres fonctions métaboliques.

L'absorption racinaire du chlore par les plantes est très rapide et très intense. Les facteurs de transfert sol-plante varient de 2 à 400 (par rapport au végétal sec). Ces valeurs très élevées reflètent la grande mobilité et la grande disponibilité du chlore dans la plupart des types de sols (Coughtrey *et al.*, 1983 ; Colle *et al.*, 2001 ; Sheppard *et al.*, 1999). Le pH et la matière organique sont probablement les paramètres du sol qui ont le plus d'influence sur l'absorption racinaire du chlore, celle-ci diminuant avec l'acidité et avec l'augmentation de la teneur en carbone organique. Cependant d'autres facteurs pourraient jouer un rôle important telles les concentrations de la solution du sol en sulfates, phosphates, nitrates, magnésium, brome et iode.

Le chlore 36, sous forme soluble, peut être absorbé par le feuillage des plantes de façon importante et très rapide, surtout lorsque l'apport racinaire est restreint (Coughtrey *et al.*, 1983). Néanmoins, il n'existe pratiquement pas de données chiffrées concernant les taux d'absorption de chlore gazeux ou soluble par le feuillage des végétaux. L'ion chlorure, après son absorption par voie foliaire ou racinaire, est rapidement transporté et distribué à l'ensemble des tissus et organes des plantes.

Animaux

Pour les animaux d'élevage les coefficients de transfert à la viande et au lait sont connus et proviennent essentiellement d'observations réalisées sur le chlore stable (AIEA, 1994 ; Ng *et al.*, 1977). Chez les animaux, la présence du chlore est constatée principalement à l'état de chlorure de sodium.

Produits transformés

Les effets des transformations agro-alimentaires sur les activités des produits transformés ne sont pas documentés.

Mobilité et biodisponibilité en milieu aquatique continental

Eaux et sédiments

Le chlore est un élément extrêmement conservatif. Pour cette raison, le rapport $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ est utilisé pour la datation et la compréhension des processus géochimiques et hydrologiques (Kaufman *et al.*, 1990). L'ion chlorure est la forme stable dominante des isotopes du chlore, qui n'est pratiquement jamais impliquée dans les processus redox naturels. En présence de la plupart des cations courants (sauf ceux du premier groupe), l'ion chlorure se maintient dans la phase aqueuse et n'atteint le seuil de précipitation que pour des concentrations supérieures à 300 g.l^{-1} . Les seules formes d'immobilisation géologiques plus ou moins longues des ions Cl^- sont les évaporites issues du domaine marin et quelques substitutions d'ions fortement électronégatifs tels que OH^- sur les excès de charges positives des argiles (Fontes, 1985). Une faible proportion de ^{36}Cl est susceptible de s'échanger avec du chlore stable faiblement lié à des sites de surface (Coughtrey *et al.*, 1983).

Végétaux et animaux

Le chlore est un macro-élément indispensable au fonctionnement normal des organismes aquatiques, puisqu'il joue un rôle essentiel dans l'équilibre ionique et osmotique de la cellule. Avec le sodium et le potassium, il fait partie des ions inorganiques majoritaires, dont les concentrations internes sont régulées via des systèmes de transport actif, de diffusion passive ou facilitée.

Comparativement à d'autres sels minéraux tels que le sodium, le potassium ou le phosphore, le chlore s'accumule assez peu chez les phanérogames immergées (Waisel *et al.*, 1982). Le transfert par voie foliaire ou racinaire est faible, et chacun des processus peut dominer l'autre suivant l'espèce étudiée. Le taux de translocation des racines vers les feuilles ou vice-versa, demeure inférieur à 5 %, quelle que soit l'espèce considérée.

Dans le cas des animaux aquatiques, les études relatives au ^{36}Cl concernent essentiellement son utilisation en tant que traceur du chlore stable, avec pour objectif de caractériser les processus de maintien de l'homéostasie dans différentes conditions de salinité. Ce mécanisme implique des adaptations fonctionnelles des principaux organes d'échange, les branchies, l'intestin et le rein.

Pour les espèces d'eau douce, dites hyper-osmotiques, l'enjeu est de faire face à des excès d'eau et à des pertes de Na^+ et de Cl^- . Les concentrations ioniques sont maintenues constantes dans le système circulatoire par la modulation des vitesses d'absorption et d'excrétion (Chaise-Martin *et al.*, 1968 ; Patrick *et al.*, 2001). Chez les poissons d'eau douce, l'absorption du chlore se fait *via* des cellules branchiales (cellules à chlorure) riches en mitochondries (Perry, 1997 ; Goss *et al.*, 1998 ; Morgan *et al.*, 1994).

Les travaux publiés fournissent toutefois rarement des indications sur les concentrations mises en jeu. Par conséquent, les données quantitatives sur le transfert du ^{36}Cl aux organismes dulçaquicoles sont issues des connaissances sur le comportement du chlore stable. La concentration du chlore stable dans l'eau variant de 1 à 35 mg.l^{-1} , avec une valeur moyenne de 7 mg.l^{-1} , les gammes de variation des facteurs de concentration peuvent être estimées d'après les connaissances sur les concentrations moyennes en chlore stable dans les organismes d'eau douce.

Pour les plantes, le facteur de concentration moyen est de 0,7 (poids frais). Il est d'autant plus faible que l'on s'élève dans la chaîne trophique, puisque dans le cas des invertébrés, sa valeur est de 0,14, tandis qu'elle est de 0,07 chez les poissons (Coughtrey *et al.*, 1983).

En résumé ...

Le chlore, dont le rôle constitutif des organismes vivants est pourtant primordial, a été peu étudié du point de vue de la radioécologie. Il existe peu de données spécifiques au comportement du chlore ³⁶ dans les écosystèmes continentaux. Certaines valeurs sont données par analogie comportementale avec le chlore stable ou d'autres halogènes (brome ou iode).

Dans le sol et dans l'eau, le chlore est extrêmement mobile et présent sous forme d'ion chlorure. Les plantes l'absorbent rapidement et très fortement que ce soit par voie foliaire ou par voie racinaire. Chez les organismes d'eau douce, le transport du chlore est régulé par les branchies. Le facteur de concentration, estimé d'après les connaissances sur le chlore stable, est d'autant plus faible que l'on s'élève dans la chaîne trophique.

Paramètres radioécologiques usuels : milieu terrestre

Coefficient de distribution eau-sol K_d ($Bq.kg^{-1}$ de sol sec par $Bq.l^{-1}$ d'eau)

Sol sableux et/ou acide	$< 10^{-2}$
Sol argileux	$< 10^{-1}$
Sol limoneux ou texture moyenne	$< 10^{-1}$
Sol organique (> 30% de M.O.)	$1,2 \times 10^0$

(AIEA, 1994 ; Ng *et al.*, 1977 ; Colle *et al.*, 2001)

Facteur de transfert foliaire ($Bq.kg^{-1}$ de végétal sec par $Bq.m^{-2}$)

Aucune valeur

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

Céréales (grain)	$3,5 \times 10^1$
Légumes feuilles	$1,1 \times 10^2$
Légumes fruits (pois, haricots)	$4,0 \times 10^1$
Légumes racines (betterave, radis)	$8,0 \times 10^1$
Tubercules (pomme de terre)	$8,5 \times 10^1$
Herbe	$1,2 \times 10^2$

(AIEA, 1994 ; Ng *et al.*, 1977 ; Colle *et al.*, 2001)

Facteur de transfert aux produits d'origine animale (j.kg⁻¹ ou j.l⁻¹)

Lait de vache	$1,7 \times 10^{-2}$
Viande de bœuf	$2,0 \times 10^{-2}$
Viande d'ovin	$6,2 \times 10^{-1}$
Viande de porc	$2,2 \times 10^{-1}$
Volailles	$8,7 \times 10^0$
Oeufs	$8,7 \times 10^0$

(AIEA, 1994 ; Ng *et al.*, 1977 ; Colle *et al.*, 2001)

Facteur de transfert par transformation alimentaire

Aucune valeur

Paramètres radioécologiques usuels : eaux douces

Coefficient de distribution eau-MES Kd (Bq.kg⁻¹ de solide sec par Bq.l⁻¹ d'eau)

Sédiments de surface, matières en suspension (valeur générale)	1×10^0
--	-----------------

(Coughtrey *et al.*, 1983)

Facteur de concentration dans les végétaux (Bq.kg⁻¹ de végétal frais par Bq.l⁻¹ d'eau)

Plantes supérieures en général	$1,4 \times 10^{-1} - 5 \times 10^0$
Phanérogames immergées – Voie foliaire	
<i>Myriophyllum spicatum</i>	$2,7 \times 10^{-4}$
<i>Potamogeton perfoliatus</i>	$2,6 \times 10^{-3}$
<i>Potamogeton lucens</i>	$8,2 \times 10^{-4}$
<i>Najas marina</i>	$1,5 \times 10^{-2}$
Phanérogames immergées – Voie racinaire	
<i>Myriophyllum spicatum</i>	$6,0 \times 10^{-4}$
<i>Potamogeton perfoliatus</i>	$1,2 \times 10^{-3}$
<i>Potamogeton lucens</i>	$1,8 \times 10^{-3}$
<i>Najas marina</i>	$6,2 \times 10^{-3}$

(Waisel *et al.*, 1982)

Facteur de concentration dans les animaux (Bq.kg⁻¹ d'animal frais par Bq.l⁻¹ d'eau)

Invertébrés	$3 \times 10^{-2} - 1 \times 10^0$
Poissons en général	$1,4 \times 10^{-2} - 5 \times 10^{-1}$

(Coughtrey *et al.*, 1983)

Facteur de transfert trophique (Bq.kg⁻¹ de prédateur frais par Bq.kg⁻¹ de proie fraîche)

Aucune valeur

Bibliographie succincte

Bentley HW, Phillips F et Davis SN (1986). Chlorine-36 in the terrestrial environment. *In*: Fritz P, Fontes JC (ed). *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry Vol. 2*, Elsevier, London, 427-480.

Chaise-Martin C, Martin P et Bernard M (1968). Biologie expérimentale. Homéo-ionémie chez *Margaritana margaritifera* L. (Unionidés), étudiée à l'aide des radioéléments ^{24}Na et ^{36}Cl . *C R Soc Biol*, 162(2): 523-526.

Colle C, Mauger S, Massiani C, Kashparov V et Grasset G. (2001). Behaviour of chlorine 36 in cultivated terrestrial ecosystems. Actes du congrès ECORAD, 3-7 sept 2001, Aix en Provence, France *Radioprotection - Colloques*, 37,C1: 49-496.

Coughtrey PJ, Jackson D et Thorne MC (1983). *Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems Vol. 3*. Balkema, Rotterdam, 77-101.

Fontes JC (1985). Méthode au chlore 36. Datation des eaux. *In*: Roth E, Poty B (ed). *Méthodes de datation par les phénomènes nucléaires naturels, applications*. Masson, Paris, 401-419.

Goss G, Perry S, Fryer J, Laurent P (1998). Gill morphology $\alpha\beta\delta$ acid-base regulation in freshwater fishes. *Comp Biochem Phys A*, 119(1): 107-115.

IAEA (1994). *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments*. Technical reports series 364. IAEA (ed), Vienne.

Kaufman A, Margaritz M, Paul M, Hillaire-Marcel C, Hollos G, Boaretto E et Taieb M. (1990). The ^{36}Cl ages of the brines in the Magadi-Natron basin, East Africa. *Geochim Cosmochim Acta*, 54: 2827-2833.

Kotzer T, Gascoyne M, Mukai M, Ross J, Waito G, Milton G et Cornett R (1998). ^{36}Cl , ^{129}I and noble gas isotope systematics in groundwaters from the Lac du Bonnet Batholith, Manitoba, Canada. *Radiochim Acta*, 82: 313-318.

Morgan I, Potts W et Oates K (1994). Intracellular ion concentrations in branchial epithelial-cells of brown trout (*Salmo trutta*) determined by X-ray microanalysis. *J Exp Biol*, 194: 139-151.

Ng YC, Colsher CS, Quinn DJ et Thompson SE (1982). *Transfer coefficients for the prediction of the dose to man via the forage-cow-milk pathway from radionuclides released to the biosphere*. Lawrence Livermore Laboratory NUREG/CR 2976, 94-95.

Nuclides 2000 (1999). *An electronic chart of the nuclides*. Institute for Transuranium Elements, Joint research center, European commission.

Patrick M, Gonzalez R et Bradley T (2001). Sodium and chlorine regulation in freshwater and osmoconforming larvae of *Culex* mosquitoes. *J Exp Biol*, 204(19): 3345-3354.

Perry S (1997). The chloride cell: structure and function in the gills of freshwater fishes. *Annu Rev Physiol*, 59: 325-347.

Sheppard SC, Johnson LH, Goodwin BW, Tait JC, Wuschke DM et Davison CC (1996). Chlorine-36 in nuclear waste disposal - 1. Assessment results for used fuel with comparison to ^{129}I and ^{14}C . *Waste Manage*, 16(7): 607-614.

Sheppard SC, Evenden WG et Macdonald CR (1999). Variation among chlorine concentration ratios for native and agronomic plants. *J Environ Radioactiv*, 43: 65-76.

Waisel Y, Agami M et Shapira Z (1982). Uptake and transport of ^{86}Rb , ^{32}P , ^{36}Cl and ^{22}Na by four submerged hydrophytes. *Aquat Bot*, 13: 179-186.