



**RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE**

*Liberté
Égalité
Fraternité*

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

RAPPORT

PERTINENCE DE LA DOCTRINE POST-ACCIDENTELLE POUR DES ACCIDENTS AUTRES QUE CEUX POUVANT INTERVENIR SUR UN CNPE

CAS DES REJETS D'URANIUM

Pôle Santé Environnement

Rapport IRSN N° 2022-00842

Nb. pages : 160 — Nb. pages de l'annexe : 116

RÉSUMÉ

Mots clés : uranium, post accidentel, doctrine, homme, environnement

Le CODIRPA a émis en 2019 (puis en 2022) de nouvelles recommandations sur la doctrine post-accidentelle, recommandations établies en premier lieu pour des accidents sur des CNPE. L'ASN a demandé à l'IRSN d'examiner dans quelle mesure ces recommandations sont pertinentes dans le cas de rejets accidentels de radionucléides émetteurs α , à partir de l'exemple de l'uranium.

Le rapport présente des éléments de connaissance sur le comportement de l'uranium dans l'environnement et dans l'organisme humain, sur la métrologie des isotopes de l'uranium dans l'environnement et dans l'organisme, ainsi que sur les voies d'exposition contribuant à l'impact radiologique et chimique. Enfin, la robustesse des recommandations du CODIRPA dans le cas de rejets accidentels dont l'uranium est le principal élément est discutée.

TABLE DES MATIÈRES

1. INTRODUCTION.....	7
2. GENERALITES SUR L'URANIUM	8
3. INSTALLATIONS OU TRANSPORTS CIVILS POUVANT ETRE CONCERNES PAR DES REJETS ACCIDENTELS D'URANIUM	9
4. L'URANIUM ET L'ENVIRONNEMENT	11
4.1. Niveaux d'activité dans l'environnement	11
4.1.1. Activités des sols français métropolitains.....	11
4.1.2. Activités dans les aérosols atmosphériques.....	12
4.1.3. Activités dans les eaux et les sédiments.....	12
4.1.4. Activités dans les végétaux et denrées alimentaires.....	13
4.2. Valeurs de références, seuils de contamination.....	14
4.2.1. Valeurs de référence concernant l'eau de boisson	14
4.2.2. Valeurs de références concernant les denrées	15
4.3. Comportement dans les matrices environnementales	17
4.3.1. Mobilité dans le sol.....	17
4.3.2. Remise en suspension atmosphérique.....	17
4.3.3. Transferts aux végétaux.....	17
4.3.4. Transferts aux animaux d'élevage	18
4.3.5. Transferts dans le milieu aquatique continental	19
4.3.6. Transferts dans le milieu aquatique marin	19
4.4. Les moyens et les capacités de mesures pour les matrices environnementales et les aliments....	20
4.4.1. Moyens de mesure IRSN.....	20
4.4.2. Éléments de stratégie de mesure en crise.....	22
4.4.3. Les laboratoires hors IRSN potentiellement mobilisables.....	22
5. L'URANIUM ET L'IMPACT A L'HOMME	23
5.1. Comportement dans l'organisme et toxicité chez l'homme.....	23
5.1.1. Devenir de l'uranium après incorporation	23
5.1.2. La toxicité de l'uranium	24
5.1.3. Les effets déterministes.....	24
5.1.4. Les effets stochastiques à long terme	24
5.2. Les moyens de mesures de la contamination dans l'organisme à l'IRSN	25
5.2.1. Les mesures de contamination interne	25
5.2.2. L'estimation de la dose par l'interprétation des mesures.....	26
5.2.3. Principes et capacités de mesure chez l'homme.....	27
5.2.4. Les traitements à la suite d'une contamination par l'uranium	28

5.3. Évaluation de l'impact radiologique et chimique	28
5.3.1. Méthode d'évaluation de l'impact radiologique	28
5.3.2. Principes de l'évaluation de l'impact chimique	29
5.3.3. Exposition des populations à un rejet d'uranium (étude de cas)	31
6. PERTINENCE DES RECOMMANDATIONS ACTUELLES DU CODIRPA	34
7. SYNTHÈSE	38
ANNEXES	44

TABLE DES FIGURES ET DES TABLEAUX

Figures

Figure 1 : Cycle du combustible nucléaire	9
Figure 2 : Concentration moyenne de l'uranium dans les roches en France (sur la base des limites de la carte géologique nationale à l'échelle 1 :1 000 000 ; mg/kg = ppm) [13].....	11
Figure 3 : Présence de l'uranium dans les eaux et les sédiments de rivière en France métropolitaine.	13
Figure 4 : Présence de l'uranium dans les végétaux en France métropolitaine.	14
Figure 5 : Process de transfert aux végétaux	18
Figure 6 : Schéma des analyses des émetteurs α réalisables sur le terrain et en laboratoire (Il est entendu par mesures directes, une mesure faite sans prélèvement de matière).....	20

Tableaux

Tableau 1 : Masse et activité des différents isotopes de l'uranium naturel [7].....	8
Tableau 2 : Mélanges isotopiques d'uranium	10
Tableau 3 : Niveaux d'activité en uranium dans les aérosols autour des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale observée]).	12
Tableau 4 : Activités dérivées définies dans la directive Euratom 2013/51 [15]	15
Tableau 5 : Limites indicatives proposées dans le Codex Alimentarius pour la famille de radionucléides dans laquelle est intégré ^{235}U	15
Tableau 6 : NMA (Bq/kg ou Bq/L) pour les denrées alimentaires [18]	16
Tableau 7 : Évaluation d'une dose annuelle pour une consommation aux niveaux maximums recommandés par la FAO ou par la commission européenne.....	16
Tableau 8 : Facteur de transfert à l'équilibre (j.kg^{-1} ou j.L^{-1}) pour certains produits animaux d'élevage [valeur moyenne tirée du TRS 472 de l'AIEA]	18
Tableau 9 : DPUI Inhalation et ingestion pour l' ^{234}U , ^{235}U et ^{238}U (dose corps entier) [39].....	29
Tableau 10 : Formes d'uranium selon leur solubilité [40][41]	29
Tableau 11 : Valeurs toxicologiques de référence (VTR) recommandées par l'INERIS pour l'uranium [48][49]	31

1. INTRODUCTION

Dans le cadre de ses travaux engagés en 2005, le CODIRPA¹ a publié en 2012 des éléments de doctrine pour la gestion de la phase post-accidentelle d'un accident nucléaire [1].

L'accident de Fukushima et le retour d'expérience des exercices de crise ont conduit le CODIRPA à entamer une démarche de mise à jour de ces éléments de doctrine, en travaillant notamment sur un scénario conduisant à un rejet de longue durée sur un CNPE, et à proposer en 2019 de nouvelles recommandations pour la doctrine post-accidentelle appliquées à un rejet de CNPE [2] et reprises dans la publication de 2022 de l'ASN [3]. En parallèle de cette publication, le CODIRPA a entamé en 2021 des travaux permettant l'évaluation de la pertinence de cette nouvelle doctrine pour des rejets autres que ceux susceptibles de se produire sur un CNPE, notamment en cas de rejet de plutonium. Ce sujet, traité dans le cadre d'une saisine de l'IRSN [4] est actuellement à l'étude dans le cadre d'un groupe de travail (GT) au sein du CODIRPA.

Afin d'alimenter ce groupe de travail, l'IRSN a de nouveau été saisi par l'ASN (cf. Annexe 1) pour réaliser une analyse de la pertinence de la doctrine dans le cas de rejets accidentels d'uranium et fournir aux membres du GT une base d'information permettant d'introduire le sujet, afin :

- de recenser les installations pouvant être concernées par des rejets accidentels d'uranium ;
- de préciser les voies de transfert de l'uranium dans l'environnement (transfert dans l'eau et dans les productions agricoles) et les moyens et capacités disponibles de mesure de l'uranium dans les aliments et les matrices environnementales ;
- de préciser les effets sanitaires de l'uranium sur l'homme et les conséquences à long terme, ainsi que les normes actuelles de protection, dans l'objectif d'avoir des éléments pertinents pour la révision de la doctrine ;
- d'analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle, à savoir l'identification des points de la doctrine post-accidentelle (dans sa version de 2019) qui nécessitent une réflexion du GT pour les rejets d'uranium.

Ce rapport a pour objectif de fournir les éléments concernant l'uranium utiles au CODIRPA pour poursuivre ses réflexions sur les éléments de doctrine post-accidentelle. Pour cela seuls les rejets où l'uranium est l'élément principal rejeté sont étudiés. Par ailleurs les problématiques associées au marquage à l'uranium du fait de l'exploitation de sites miniers ne sont pas considérées.

Après la présentation d'éléments généraux sur l'uranium au chapitre 2, le chapitre 3 précise les types d'installations pouvant être à l'origine de rejets accidentels d'uranium. Le chapitre 4 fait état des connaissances sur le comportement de l'uranium dans les différents compartiments de l'environnement et les moyens de mesure disponibles pour évaluer les niveaux de contamination. Le chapitre 5 présente ses effets sanitaires sur l'homme, ses conséquences à long terme, les voies d'exposition et fait état des moyens de mesure pour évaluer les niveaux de contamination dans l'organisme. Enfin, à partir des différentes informations des précédents chapitres, le chapitre 6 propose une analyse de la pertinence des recommandations du CODIRPA pour l'évolution de la doctrine post-accidentelle (dans sa version de 2019 [2]) dans le cas de rejets d'uranium.

Les annexes fournissent des informations supplémentaires aux différents chapitres du corps de ce rapport.

¹ Un Glossaire est disponible en fin de rapport.

2. GENERALITES SUR L'URANIUM

Pendant les années qui suivirent sa découverte, en 1789, par Martin Heinrich Klaproth, on trouva à l'uranium peu d'applications autres que celles liées à ses propriétés de colorant mises à profit dans la fabrication de verres ou d'émaux. Ses propriétés radioactives ne furent découvertes qu'à la fin du XIX^{ème} siècle par Henri Becquerel. La mise en évidence en 1938 de la fission de l'uranium et de la possibilité de réaction en chaîne, marque le début de l'industrie nucléaire, avec une utilisation initiale à des fins militaires (bombe A, propulsion navale) puis également une utilisation pour la production d'électricité dans les années 1950.

L'uranium est un élément naturellement présent sur terre en quantités significatives. Dans le sol, il est inégalement réparti mais des mines sont exploitées sur quasiment tous les continents. Les principaux gisements se situent en Australie, au Kazakhstan, au Canada et en Afrique (Afrique du Sud, Namibie et Niger) [5]. Sur le territoire français métropolitain, plus de 200 sites ont été exploités à partir des années 50 jusqu'en 2001 [6]. Durant cette période, 52 millions de tonnes de minerais ont été extraits des mines françaises et ont permis la production de 80 000 tonnes d'uranium.

L'uranium naturel est composé principalement de 3 isotopes, tous radioactifs et suivant une désintégration de type α (émission d'une particule α à chaque désintégration) : ^{238}U , ^{235}U et ^{234}U . L'émission de particules α s'accompagne également de l'émission de photons X ou γ d'énergie relativement faible et avec un taux d'émission par désintégration également relativement faible.

Le tableau 1 présente la composition isotopique de l'uranium naturel. L' ^{234}U est l'un des descendants de l' ^{238}U , mais avec toutefois une demi-vie bien plus courte d'où sa faible teneur massique. L' ^{234}U est plus radioactif que les autres isotopes et contribue pour moitié environ à la radioactivité totale de l'uranium naturel. Les teneurs massiques respectives sont susceptibles de varier très légèrement en fonction de l'origine du minerai. D'autres isotopes de l'uranium naturel sont décelables à l'état de traces tels ^{236}U ou ^{233}U .

Tableau 1 : Masse et activité des différents isotopes de l'uranium naturel [7]

Isotope	Teneur massique (% massique)	Activité spécifique Bq.g ⁻¹	% d'activité (hors descendants)	Demi-vie (années)	Mode de décroissance
^{234}U	0,0057	$2,30.10^8$	50,4	245 000	α
^{235}U	0,719	$8,0.10^4$	2,2	704 millions	α
^{238}U	99,275	$1,24.10^4$	47,4	4,47 milliards	α

L' ^{238}U se désintègre suivant une chaîne de désintégration à plusieurs membres (dont l' ^{234}U , le ^{226}Ra , le ^{222}Rn) pour *in fine* aboutir au ^{206}Pb . L' ^{235}U se désintègre suivant une chaîne de désintégration à plusieurs membres également, pour *in fine* aboutir au ^{207}Pb . Les produits de filiation des ^{238}U et ^{235}U sont donc nombreux, et parmi eux figurent des isotopes à l'origine d'émissions de particules beta et gamma.

Dans l'industrie nucléaire l'uranium est utilisé pour les propriétés de fission de l' ^{235}U . La teneur d' ^{235}U dans l'uranium naturel étant relativement faible, l'uranium sera enrichi avant son utilisation dans les réacteurs électrogènes, les réacteurs de recherche ou les armes. Dans le vocabulaire courant, les formes enrichies, appauvries ou issues du retraitement de l'uranium signifient que les pourcentages massiques des différents isotopes de l'uranium sont différents de ceux présentés dans le tableau 1. L'uranium est dit enrichi (*n.d.r* enrichi en ^{235}U) lorsque la masse d' ^{235}U est supérieure à celle présente dans l'uranium naturel ; par exemple un uranium enrichi à 5 % présente une teneur massique d' ^{235}U de 5 %.

À l'état pur, l'uranium solide est un métal radioactif. Dans le milieu naturel, il va se complexer à d'autres éléments, tels que l'oxygène, l'azote, le soufre, le carbone, sous forme d'oxydes, de nitrates, de sulfates ou de carbonates. Dans des conditions oxydantes, il deviendra plus facilement soluble (passage de la valence IV à la valence VI). L'uranium a quatre valences possibles (+III à +VI), les valences IV et VI étant les plus répandues dans les milieux

terrestres ou aquatiques de l'environnement. Les conditions de passage de la valence IV à la valence VI dépendent du potentiel d'oxydoréduction du milieu.

L'uranium est un métal lourd. Après incorporation, du fait de ses propriétés chimiques, il va se bioaccumuler durablement dans l'organisme. L'accumulation de l'uranium induit, au-delà de sa radiotoxicité, une chimiotoxicité significative.

Par rapport au plutonium, traité dans le rapport en réponse à la précédente saisine [4], l'uranium présente certaines particularités à souligner. D'une part, sa présence à l'état naturel fait qu'une contamination accidentelle peut s'ajouter à un environnement ou à un organisme déjà marqués par un « bruit de fond ». D'autre part, l'uranium est un élément à la fois radiotoxique et chimiotoxique, ces deux aspects de toxicité devant donc être considérés dans l'analyse de l'impact d'une exposition à des composés comportant de l'uranium.

3. INSTALLATIONS OU TRANSPORTS CIVILS POUVANT ETRE CONCERNES PAR DES REJETS ACCIDENTELS D'URANIUM

Pour son utilisation en centrale de production d'électricité, le taux d'enrichissement en ²³⁵U est d'environ 3,5 % [5]. Des enrichissements à des taux supérieurs (jusqu'à 95 % [5]) peuvent être réalisés pour des utilisations en réacteur de recherche, pour les réacteurs des bâtiments militaires ou pour les armes.

Depuis son extraction minière jusqu'à son retraitement, l'uranium va être traité dans différentes installations, être conditionné sous différentes formes et faire l'objet de transports entre les sites. Le schéma sur la figure 1 présente les différentes étapes du cycle, les installations concernées en France et les principaux composés de l'uranium qui y sont rencontrés. Plus de détails concernant les installations citées sont présentés en Annexe 2.

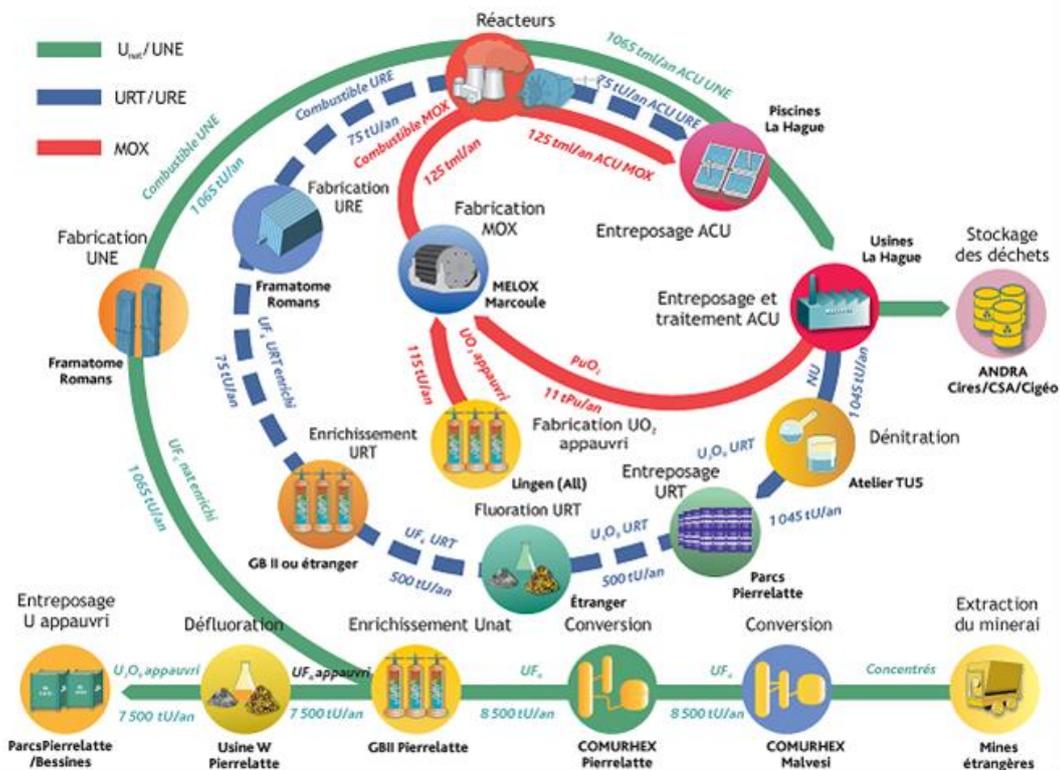


Figure 1 : Cycle du combustible nucléaire

À la sortie de la mine, le minerai d'uranium est traité dans des usines à proximité. Il est broyé et subit des attaques acides ou alcalines qui permettent la conversion d'uranium sous sa forme oxydée (IV) en uranium sous sa forme oxydée (VI). Divers procédés de purification ou de concentration sont ensuite réalisés avant d'obtenir du sesquioxyde d'uranium, U_3O_8 (principale composant du « yellow-cake »), qui sera vendu sur les marchés internationaux pour alimenter la filière de production de combustibles nucléaires.

À son arrivée sur le territoire national, le yellow-cake est raffiné et converti en UF_4 sur le site de Comurhex à Malvesi (34), puis converti en hexafluorure d'uranium UF_6 sur le site du Tricastin (26). L'étape suivante est l'enrichissement de cet UF_6 en ^{235}U sur l'installation Georges Besse II (GBII), également sur le site du Tricastin. L'uranium enrichi sera envoyé sur le site de Framatome à Romans-sur-Isère (38) pour la fabrication de crayons de combustible UNE (Uranium Naturel Enrichi) sous forme de pastilles d' UO_2 mises en gaines.

Lors de ces premières étapes du cycle de vie de l'uranium, le principal risque est une fuite d' UF_6 conduisant à la dispersion de fluorure d'hydrogène (HF) et d'uranium sous forme de fluorure d'uranyle (UO_2F_2).

Le résidu issu du procédé d'enrichissement, dit uranium appauvri, sera reconverti d' UF_6 en U_3O_8 , et entreposé sur différents sites (Tricastin et Bessines essentiellement). Le principal risque est la dispersion de poudre d' U_3O_8 en cas d'incendie ou de fuite.

Après son passage en réacteur le combustible sera traité à l'usine de La Hague pour en extraire les composés valorisables tels l'uranium (dit uranium de retraitement, ou URT) et le plutonium. Le principal risque impliquant de l'uranium à cette étape concerne la fuite de nitrate d'uranyle ($UO_2(NO_3)_2$, ou NU) avant son expédition vers le site du Tricastin où il sera converti en poudre d' U_3O_8 avant entreposage. Comme l'uranium naturel, l'uranium issu du retraitement peut également faire l'objet d'un enrichissement en ^{235}U qui conduit à obtenir de l'uranium de retraitement enrichi (URE) lui-même éligible à la fabrication de combustible nucléaire.

Ainsi au cours du cycle de vie de l'uranium, les principaux risques de rejets accidentels notables d'uranium depuis les différentes installations du cycle du combustible sont des fuites de liquides ou de gaz d'hexafluorure d'uranium (UF_6), de nitrate d'uranyle ($UO_2(NO_3)_2$), des dispersions de poudre de dioxyde d'uranium (UO_2), de sesquioxyde d'uranium (U_3O_8) ou de tétrafluorure d'uranium (UF_4).

Selon les étapes du cycle, l'uranium qui pourrait être rejeté accidentellement dans l'environnement présente donc différentes formes physico-chimiques, mais présente également une variété de mélanges isotopiques selon qu'il est enrichi à divers degrés, appauvri, ou issu du retraitement. Le tableau 2 présente différents mélanges isotopiques. Les produits de filiation radioactive ne sont pas indiqués.

Tableau 2 : Mélanges isotopiques d'uranium

Enrichissement	% en masse				% en activité			
	U-234	U-235	U-236	U-238	U-234	U-235	U-236	U-238
Appauvri à 0,2 % [7]	0,001	0,19	$2,7 \cdot 10^{-3}$	99,8	9,86	1,11	0,46	88,6
Naturel [7]	0,006	0,719	nd	99,3	48,7	2,26	nd	49,0
Naturel enrichi à 3,7 % [10]	0,033	3,70	$2,0 \cdot 10^{-3}$	92,3	84,0	3,27	0,05	12,7
Naturel enrichi à 50 % [11]	0,520	50,0	nd	49,5	96,3	3,22	nd	0,5
Retraitement [12]	0,022	1,06	0,52	98,4	65,4	1,10	16,0	15,6

Il convient de noter que les masses atomiques de ^{234}U et ^{235}U sont trop proches pour qu'ils puissent être totalement séparés lors du procédé d'enrichissement, aussi un enrichissement en ^{235}U s'accompagne d'une augmentation de la teneur en ^{234}U .

Au-delà des isotopes de l'uranium, les descendants issus des chaînes de filiations radioactives peuvent également être présents dans le mélange susceptible d'être rejeté. Ces isotopes, notamment les émetteurs beta-gamma,

pourront s'avérer influents sur les méthodes et moyens de caractérisation de la contamination dans les matrices environnementales ou dans l'organisme.

4. L'URANIUM ET L'ENVIRONNEMENT

4.1. Niveaux d'activité dans l'environnement

L'activité de l'uranium constaté dans les principales composantes de l'environnement est liée à la présence naturelle de l'uranium dans les sols et les formations géologiques sous-jacentes.

L'uranium présent dans l'environnement français peut, de plus, avoir pour origine l'activité humaine associée à l'exploitation du minerai d'uranium ou au cycle du combustible. Sur le sol français, les activités d'extraction minières d'uranium étaient essentiellement concentrées dans le Massif Central, les Massifs Armoricaïn et Vendéen. Pour de plus amples renseignements concernant les niveaux d'activité en uranium dans l'environnement, le lecteur pourra se rapporter à l'annexe 3.

4.1.1. Activités des sols français métropolitains

Globalement, les sols des bassins sédimentaires et des formations calcaires sont plus pauvres en uranium que ceux des massifs granitiques (Massif Central, les Massifs Armoricaïn et Vendéen). Si l'activité moyenne de l' ^{238}U dans les sols sur le territoire métropolitain, tout type de sol confondu, est de l'ordre de 40 Bq.kg^{-1} (soit environ 3 mg.kg^{-1}), elle varie de manière importante selon les formations géologiques (cf. figure 2). À titre d'exemple, des teneurs de $60\,000 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en ^{238}U (environ $4\,900 \text{ mg.kg}^{-1}$) peuvent être rencontrées dans les sols granitiques, près du lac Nègre, dans le parc national du Mercantour (06). En Europe, la concentration médiane en uranium des sols est estimée aux environs de 2 mg.kg^{-1} , avec une gamme de variation allant de moins de $0,1 \text{ mg.kg}^{-1}$ à plus de 50 mg.kg^{-1} .

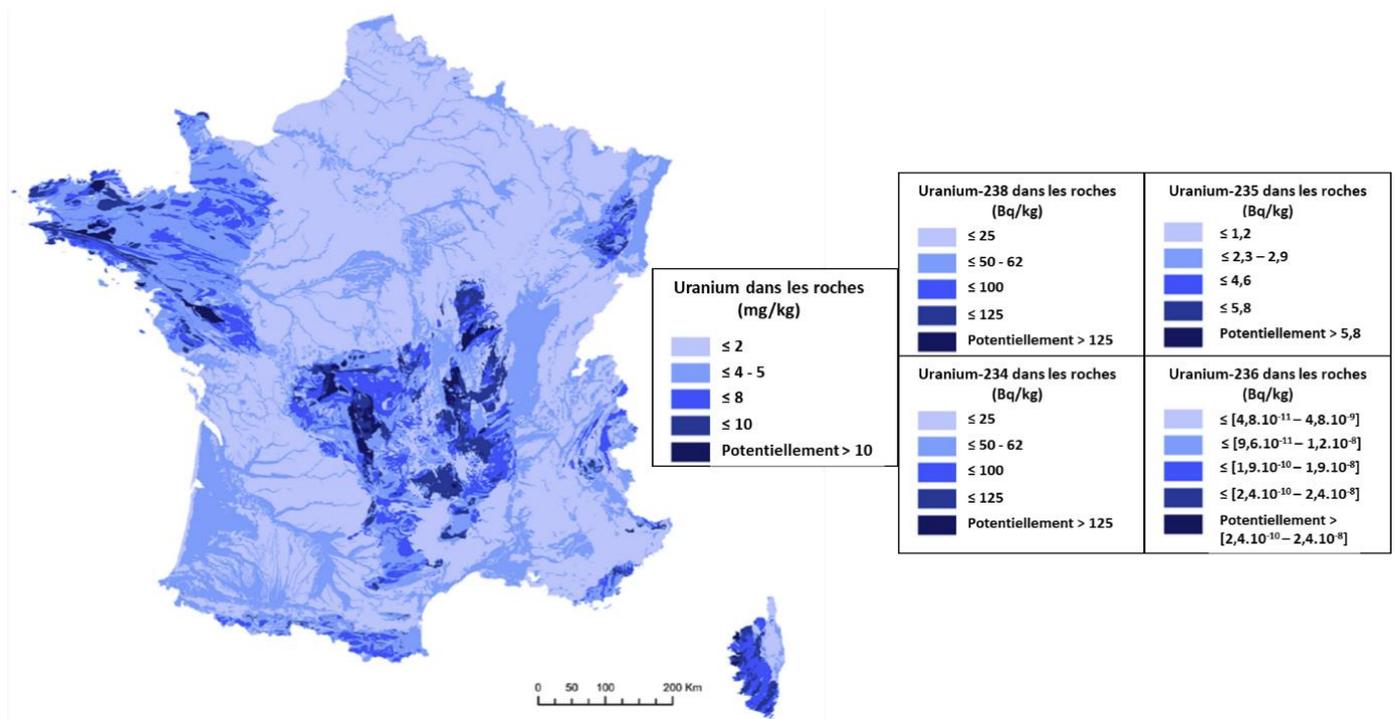


Figure 2 : Concentration moyenne de l'uranium dans les roches en France (sur la base des limites de la carte géologique nationale à l'échelle 1 :1 000 000 ; mg/kg = ppm) [13]

Dans les roches, l' ^{234}U est généralement en équilibre séculaire avec l' ^{238}U . Dans les sols, l'abondance de l' ^{234}U va néanmoins varier selon notamment la composition minéralogique et les eaux drainant ces sols. Ainsi le rapport isotopique² $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ pourra s'avérer différent de 1, le rapport restant généralement compris entre 0,9 et 1,3.

Des activités plus élevées dans les sols peuvent être constatées à proximité d'installations utilisant ou ayant utilisé l'uranium, ou encore des anciens sites miniers. Le marquage dû aux industries du cycle de l'uranium peut être évalué via la quantification de rapports isotopiques. En effet, naturellement, les activités de l' ^{235}U sont environ 20 fois plus faibles que celles de l' ^{238}U . Un rapport d'activité entre l' ^{238}U et l' ^{235}U inférieur à 20 pourra traduire un marquage avec de l'uranium enrichi en ^{235}U , un rapport d'activité supérieur à 20 pourra correspondre à un marquage d'uranium appauvri.

L' ^{236}U est naturellement présent dans les sols, à des niveaux extrêmement faibles (de l'ordre de quelques dizaines de fg.g^{-1} , soit $10^{-4} \text{ Bq.kg}^{-1}$). En revanche, autour des sites industriels manipulant l'uranium, l'activité en ^{236}U dans les sols est très supérieure aux niveaux naturels, contrairement aux niveaux d'activité en ^{238}U , ^{234}U et ^{235}U qui demeurent similaires aux niveaux naturels.

L' ^{233}U constitue également un isotope de très faible abondance (10^{-13} à 10^{-9} % de l'uranium naturel), mais qui peut être rencontré dans la nature, notamment dans les minerais d'uranium. Cependant, s'ajoute dans l'environnement l'apport en ^{233}U issu de l'historique des essais nucléaires atmosphériques.

4.1.2. Activités dans les aérosols atmosphériques

Dans les aérosols, peu de variabilité est constatée sur le territoire national. L'activité volumique moyenne en ^{238}U en dehors de l'influence d'une industrie mettant en œuvre de l'uranium est de l'ordre de $0,1 \mu\text{Bq.m}^{-3}$ soit environ $4.10^{-6} \mu\text{g.m}^{-3}$ pour de l'uranium naturel.

Les sites de Malvesi, Romans-sur-Isère et Tricastin contribuent à une augmentation locale de l'activité en uranium des poussières atmosphériques (Tableau 3).

Tableau 3 : Niveaux d'activité en uranium dans les aérosols autour des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale observée]).

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Aérosols	Malvesi	3,4 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,15 à 17,6]	0,16 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,007 à 0,79]	3,3 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,14 à 16,9]	6,4.10 ⁻⁴ $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [1,9.10 ⁻⁵ à 3,1.10 ⁻³]
	Romans-sur-Isère	0,30 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,09 à 0,64]	0,024 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,007 à 0,039]	0,56 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,18 à 0,90]	1,7.10 ⁻³ $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [2,3.10 ⁻⁴ à 3,0.10 ⁻³]
	Tricastin	0,49 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,04 à 4,5]	0,023 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,002 à 0,207]	0,45 $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [0,08 à 4,3]	3,1.10 ⁻³ $\mu\text{Bq.m}^{-3}$ [1,8.10 ⁻⁴ à 1,1.10 ⁻¹]

4.1.3. Activités dans les eaux et les sédiments

Les activités de l'uranium dans les eaux de surface, les eaux souterraines et les sédiments sont le reflet de la variabilité des teneurs en uranium dans les roches, les sols et des caractéristiques physico-chimiques des eaux.

La figure 3 présente les gammes de concentration (en mg.L^{-1} ou mg.kg^{-1}) en uranium mesurées dans les eaux et sédiments ainsi que les activités (Bq.kg^{-1}) pour les isotopes 234, 235 et 238 de l'uranium.

² Le rapport isotopique $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ correspond au rapport entre les activités de l'uranium 234 et de l'uranium 238

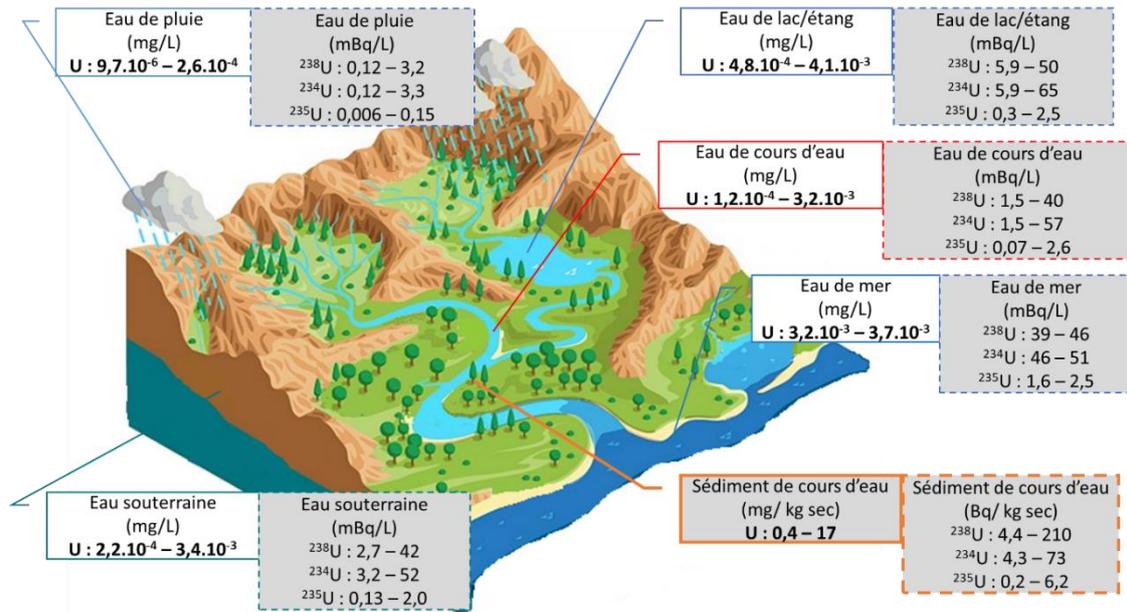


Figure 3 : Présence de l'uranium dans les eaux et les sédiments de rivière en France métropolitaine.

Dans les eaux continentales, les activités volumiques pour ²³⁸U sont comprises entre 1,5 et 40 mBq.L⁻¹ ($1,2 \cdot 10^{-4}$ et $3,2 \cdot 10^{-3}$ mg.L⁻¹). Dans l'ensemble des bassins océaniques, la concentration en uranium est relativement homogène. Elle est de l'ordre de 3 µg.L⁻¹, soit 37 mBq.L⁻¹ en ²³⁸U.

Les activités dans les sédiments de cours d'eau, non impactés par les activités humaines, vont de 4 à 200 Bq.kg⁻¹ sec soit 0,4 à 17 mg.kg⁻¹ sec.

Plusieurs études ont démontré l'accumulation de l'uranium en aval des anciens sites miniers. Une très grande gamme de variabilité de teneurs en uranium est ainsi observée dans les eaux continentales de surface et les sédiments. Les activités observées dans les eaux impactées par les mines vont de $3,7 \cdot 10^{-4}$ à 25 Bq.L⁻¹ (0,03 à 2010 µg.L⁻¹), et dans les sédiments 80 à 170 000 Bq.kg⁻¹ sec ($6,43 \cdot 10^{-3}$ à 14 g.kg⁻¹sec).

L'activité de l'eau de mer en ²³⁸U est au plus de quelques dizaines de mBq.L⁻¹, l'activité des sédiments marins est de l'ordre de quelques Bq.kg⁻¹sec.

4.1.4. Activités dans les végétaux et denrées alimentaires

Dans les végétaux terrestres, les activités en ²³⁸U et ²³⁴U varient dans des gammes comprises entre quelques mBq.kg⁻¹ et une centaine de mBq.kg⁻¹ frais, soit des niveaux pouvant atteindre plusieurs µg.kg⁻¹ frais (Figure 4).

Concernant les poissons et fruits de mer, les activités en ²³⁸U et ²³⁴U sont légèrement plus élevées, les gammes observées peuvent atteindre quelques centaines de mBq.kg⁻¹ frais, soit de l'ordre de la dizaine de µg.kg⁻¹ frais.

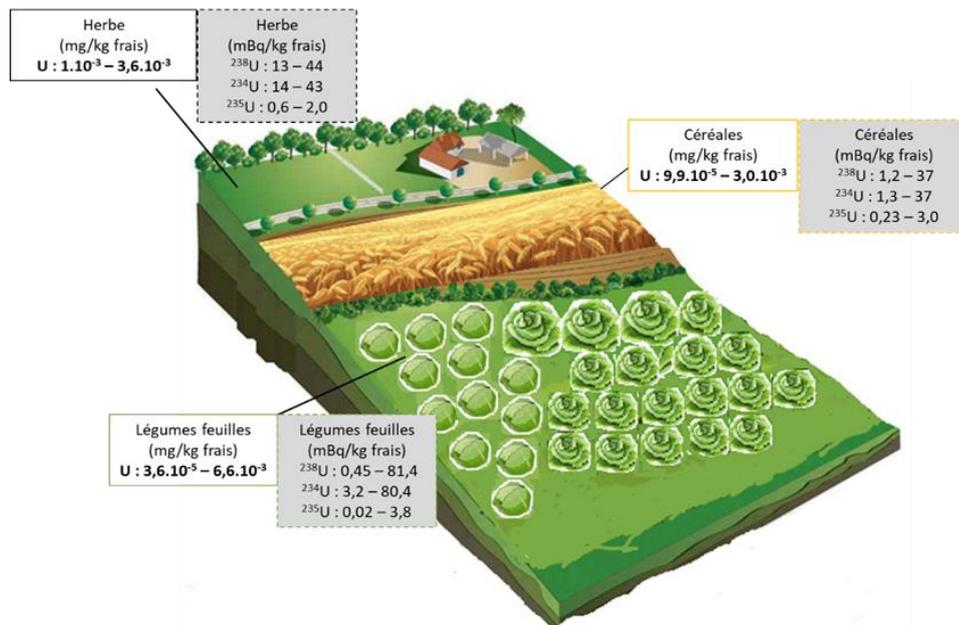


Figure 4 : Présence de l'uranium dans les végétaux en France métropolitaine.

4.2. Valeurs de références, seuils de contamination

Pour limiter les risques liés à la présence de substances potentiellement dangereuses pour la santé, la distribution d'eau potable est encadrée par différentes directives et textes législatifs. Cela concerne notamment la présence de radionucléides ou d'éléments chimiques. La commercialisation des denrées alimentaires est également réglementée, toutefois concernant les radioéléments naturels ou artificiels, les textes disponibles concernent essentiellement des restrictions à mettre en place à la suite d'accidents.

4.2.1. Valeurs de référence concernant l'eau de boisson

L'OMS fournit dans la quatrième édition de ses directives de qualité pour l'eau de boisson [14] ses recommandations pour la gestion des risques liés aux dangers pouvant affecter la sécurité sanitaire de l'eau de boisson. Dans ce document, l'uranium est traité dans deux des chapitres. Le premier concernant les éléments chimiques naturels et le deuxième concernant les radionucléides d'origine naturelle.

Concernant l'élément chimique uranium, le document propose une valeur guide de $30 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$. La valeur proposée est considérée comme étant une « valeur guide provisoire en raison de l'incertitude affectant certaines données de la base de données sanitaires ».

Concernant le risque radiologique associé à l'eau de boisson, les niveaux recommandés par l'OMS se basent sur les recommandations de la CIPR et la détermination d'un critère de dose individuelle (CDI) correspondant à une dose annuelle de $0,1 \text{ mSv}$, du fait de l'ingestion de radionucléides présents dans l'eau de boisson. Pour limiter les risques sanitaires l'OMS recommande une méthodologie d'évaluation qui se base sur un dépistage initial de l'activité alpha totale et beta totale à comparer respectivement à $0,5 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ et $1 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$.

Au niveau européen, la directive Euratom 2013/51 [15] fixe des exigences en termes de radionucléides dans les eaux destinées à la consommation. Elle définit une « dose indicative » ou « ID » de $0,1 \text{ mSv}$ qui correspond à la dose efficace engagée pour une année d'ingestion résultant de tous les radionucléides dont la présence dans les eaux destinées à la consommation humaine a été détectée, qu'ils soient d'origine naturelle ou artificielle. Pour vérifier ce niveau de dose, la directive recommande de mettre en place des contrôles d'activité alpha et beta

globale avec respectivement des niveaux de 0,1 Bq.L⁻¹ et de 1 Bq.L⁻¹. En cas de dépassement, une analyse spécifique pour quantifier chacun des radionucléides doit être réalisée, permettant alors d'évaluer par le calcul une dose indicative. Cette dose indicative est calculée sur la base d'une ingestion annuelle de 730 litres d'eau et de l'activité dite dérivée de chacun des radionucléides. Pour les isotopes de l'uranium, les activités dérivées sont présentées dans le tableau 4. Il est à noter que les valeurs proposées ne portent que sur la radioactivité de l'uranium et ne se fondent pas sur sa toxicité chimique.

Tableau 4 : Activités dérivées définies dans la directive Euratom 2013/51 [15]

Radionucléide	Activité dérivée
U-238	3,0 Bq.L ⁻¹
U-234	2,8 Bq.L ⁻¹

De telles activités volumiques correspondent à une concentration de 242 µg.L⁻¹ d'uranium naturel dans l'eau.

La réglementation française, dans son arrêté du 12 mai 2004 [16] fixant les modalités de contrôle de la qualité radiologique des eaux destinées à la consommation humaine, mis à jour par un arrêté en décembre 2015, reprend les directives du règlement Euratom.

La réglementation française et la réglementation européenne ne proposent pas de valeur limite explicitement liée à la toxicité chimique de l'uranium.

4.2.2. Valeurs de références concernant les denrées

Concernant les denrées alimentaires, les recommandations ou textes réglementaires disponibles concernent les niveaux de contamination en radionucléides à la suite d'une situation accidentelle. En revanche, il n'existe pas de référentiel réglementaire sur des niveaux de contamination dans les denrées au titre du risque chimiotoxique.

Le Codex Alimentarius [17] de la FAO³ propose des limites indicatives de radioactivité dans les aliments destinés à la consommation humaine qui ont été contaminés à la suite d'une situation d'urgence nucléaire ou radiologique et faisant l'objet d'un commerce international. La FAO mentionne que les radionucléides naturels ne sont pas pris en considération dans le document, néanmoins l'uranium 235 reste explicitement listé dans l'une des familles de radionucléides considérée. Une limite dans les aliments a été proposée pour la famille de radionucléides dans laquelle est intégrée l'²³⁵U (tableau 5). Cette valeur a été établie sur la base d'une dose annuelle de 1 mSv.an⁻¹ en supposant que seul 10 % des aliments consommés proviennent de territoires contaminés.

Tableau 5 : Limites indicatives proposées dans le Codex Alimentarius pour la famille de radionucléides dans laquelle est intégré ²³⁵U

Catégorie d'aliment	Limite indicative
Aliments pour nourrissons	100 Bq/kg
Aliments autres que les aliments pour nourrissons	100 Bq/kg

Cette limite indicative de 100 Bq.kg⁻¹ en uranium 238 correspond à une concentration en uranium naturel d'environ 8 000 µg(U).kg⁻¹.

Au niveau européen, le règlement Euratom 2016/52 [18] définit des niveaux maximaux admissibles dans les denrées alimentaires, niveaux à respecter pour la mise sur le marché européen des denrées après un accident

³ FAO – Food And Agriculture Organisation, L'Organisation des Nations Unis pour l'alimentation et l'agriculture

nucléaire. Les niveaux maximaux admissibles (NMA) sont donnés pour différentes catégories d'aliments et différentes familles de radionucléides (tableau 6). Compte-tenu de la définition des familles de radionucléides, les isotopes de l'uranium sont à classer dans la famille des radionucléides à période radioactive supérieure à 10 jours. L'établissement de ces NMA à la fin des années 80 [19] avait été réalisé en considérant 19 radioisotopes du strontium, zirconium, niobium, ruthénium, tellure, iode, césium, baryum, cérium, neptunium, plutonium et américium. Les isotopes de l'uranium ne faisaient ainsi pas partie des radioisotopes considérés. Les NMA avaient initialement été établis sur la base d'une dose annuelle de 5 mSv.an⁻¹ en supposant que 10 % des aliments consommés sont contaminés à hauteur du NMA [19]. Sans modifier les valeurs de NMA établies en 1989, la mise à jour du règlement en 2016 [18] stipule que ces niveaux correspondent à une dose annuelle de 1 mSv.an⁻¹.

Tableau 6 : NMA (Bq/kg ou Bq/L) pour les denrées alimentaires [18]

Radionucléides	Aliments pour nourrisson	Produits laitiers	Autres denrées alimentaires	Liquides alimentaires
Somme des isotopes du plutonium et d'éléments transplutoniens à émission α (notamment ²³⁹ Pu et ²⁴¹ Am)	1	20	80	20
Somme des isotopes du strontium (notamment ⁹⁰ Sr)	75	125	750	125
Somme des isotopes de l'iode (notamment ¹³¹ I)	150	500	2000	500
Somme de tous autres nucléides radionucléides à période radioactive > 10 j (notamment ¹³⁴ Cs et ¹³⁷ Cs)	400	1000	1250	1000

Dans la mesure ou la méthodologie d'utilisation des familles de radionucléides pour comparaison aux NMA est identique pour le cas Euratom et le cas Codex (somme des activités des radionucléides de la famille), intégrer l'uranium à la famille des radionucléides dont la période radioactive est supérieure à 10 jours, conduit à considérer qu'un niveau maximal admissible du règlement Euratom serait d'un facteur 4 à 12 supérieur aux recommandations émises par la FAO, et serait donc moins contraignant.

À titre indicatif, le tableau 7 présente une évaluation de dose annuelle pour un adulte qui consommerait un panier alimentaire à des niveaux d'activité correspondant aux limites proposées par la FAO d'une part, et correspondant aux NMA définis par le règlement Euratom d'autre part. Pour cette évaluation, il est considéré que l'adulte consomme 550 kg d'aliments par an en supposant 10 % de produits contaminés par l'accident. Le calcul conduit à une dose annuelle inférieure à 1 mSv pour des activités massiques de 100 Bq/kg dans les denrées alimentaires consommées à ce niveau pendant un an. Consommer des denrées alimentaires contaminées à hauteur du NMA Euratom pendant 1 an conduirait en revanche à une dose annuelle de l'ordre de 3 mSv.

Tableau 7 : Évaluation d'une dose annuelle pour une consommation aux niveaux maximums recommandés par la FAO ou par la commission européenne

Activité massique supposée du panier alimentaire (Bq/kg)	Dose annuelle dans l'hypothèse ²³⁴ U (mSv)	Dose annuelle dans l'hypothèse ²³⁵ U (mSv)	Dose annuelle dans l'hypothèse ²³⁸ U (mSv)
100	0,3	0,3	0,2
1250	3,4	3,2	3,1

4.3. Comportement dans les matrices environnementales

Dans le milieu naturel, du fait de ses propriétés physico-chimiques, l'uranium se complexe à d'autres éléments. Son comportement dans les milieux dépendra de son état d'oxydoréduction et de sa capacité à se lier aux particules solides (minérales ou organiques) en présence. Au-delà des informations présentées dans les chapitres suivants, des éléments complémentaires sont disponibles en annexe 4

4.3.1. Mobilité dans le sol

L'uranium a une mobilité moyenne dans les sols. Sa mobilité dépend de sa spéciation initiale ainsi que des conditions physico-chimiques du milieu (pH, conditions d'oxydoréduction, teneur en matière organique).

En milieu oxydant, l'uranium se trouve principalement sous des formes stables et mobiles (valence +VI) et en conditions réductrices sous des formes insolubles et peu mobiles (valence +IV). C'est généralement dans des sols aux pH proches de la neutralité (pH 5-7) que l'uranium est le moins mobile. Dans des sols carbonatés et peu pourvus en matière organique, la mobilité de l'uranium augmente, alors qu'elle reste limitée si ces sols sont riches en matières organiques notamment dans les zones humides.

La mobilité de l'uranium dans le sol peut évoluer avec le temps. Cette évolution est à l'heure actuelle peu prise en compte dans les modèles de transfert.

En radioécologie, les modèles utilisés pour prédire le transfert dans les sols repose sur l'utilisation d'un coefficient de distribution (Kd) d'un élément entre la phase dissoute et la phase particulaire. Les valeurs de Kd varient avec le type de sol. Les valeurs minimales et maximales proposées pour l'uranium par l'AIEA dans le TRS 472 [21] varient jusqu'à quatre ordres de grandeur. Le Kd moyen affiché par le TRS indique que l'uranium est plus mobile que le césium dans les sols. Néanmoins, il existe une variété de situations (forme physico-chimique de l'uranium, propriétés du sol...) parmi lesquelles des situations où l'uranium est moins mobile que le césium.

4.3.2. Remise en suspension atmosphérique

Les phénomènes de remise en suspension sont dus aux effets du vent sur les sols et aux activités anthropiques telles que les activités agricoles. Le coefficient de remise en suspension permettant d'exprimer le rapport entre l'activité volumique dans l'air et l'activité surfacique dépend du type de sol, de l'humidité, de la végétation environnante et du temps écoulé depuis la formation du dépôt. Ce coefficient de remise en suspension va également dépendre de la part d'uranium disponible et/ou fixée dans la couche superficielle de sol.

Comme indiqué dans le rapport plutonium [4], les coefficients de remise en suspension proposés dans la littérature sont essentiellement issus d'études relatives au césium. Césium et plutonium sont très peu mobiles dans les sols et sont ainsi davantage disponibles, à l'issue de la formation des dépôts, pour la remise en suspension que des radionucléides plus mobiles comme l'uranium. Dans les sols, la mobilité de l'uranium dépend en particulier des conditions physico-chimiques du milieu (§ 4.3.1), aussi dans certaines conditions la présence de l'uranium dans la couche superficielle du sol pourra diminuer rapidement. De fait, faute d'éléments spécifiques, utiliser les coefficients de remise en suspension proposés dans le rapport plutonium [4] est envisageable bien que très conservatif.

4.3.3. Transferts aux végétaux

Aucune discrimination isotopique significative n'est décrite pour des isotopes aussi lourds que l'uranium pour le transfert aux végétaux. Ce transfert est uniquement lié à la spéciation et à la biodisponibilité de l'uranium. Deux voies de contaminations sont possibles : la voie foliaire (atmosphère-plante) et la voie racinaire (sol-plante).

Pour la contamination foliaire, il faut séparer la contamination d'un organe par voie directe de la contamination par voie indirecte par redistribution interne.

La contamination par voie directe découle du dépôt sur le feuillage, les tiges ou les fruits de formes particulaires et/ou de formes dissoutes ou gazeuses. Elle est caractérisée par la part du dépôt interceptée par les plantes, et par la constante dite de « décroissance biomécanique » qui intègre les processus pouvant faire décroître l'activité sur la plante, tels que le lessivage par les pluies.

Si la contamination a lieu de manière précoce avant que l'organe cible ne soit présent, ou si l'organe cible est souterrain, sa contamination se fera alors par voie indirecte, à la suite de processus de translocation interne entre les différents organes du végétal (ex. des feuilles vers les fruits), caractérisée par un facteur de translocation. Cependant, le manque de données sur le transfert indirect ne permet pas de prédire la contamination qui sera reçue par l'organe dans un tel scénario. Pour tous les autres scénarios, le transfert par dépôt direct sur l'organe consommé est la voie prépondérante.

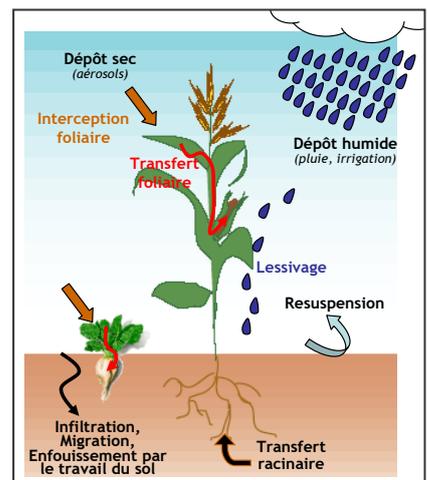


Figure 5 : Process de transfert aux végétaux

La voie racinaire a été plus étudiée. L'AIEA propose dans le TRS 472 [21] des valeurs du facteur de transfert à l'équilibre, selon les radionucléides, les types de sol, le climat, les productions végétales. Comme pour d'autres éléments, la gamme des valeurs de facteurs de transfert pour l'uranium est de fait relativement large. L'intensité du transfert racinaire est fonction de la spéciation de l'uranium et des propriétés physico-chimiques du sol. De manière générale, l'uranium n'est pas très biodisponible. Il présente une forte affinité pour les racines et est peu transloqué aux parties aériennes. En comparant avec les données du césium, les facteurs de transfert sous-tendent une mobilité plus faible de l'uranium que celle du césium.

4.3.4. Transferts aux animaux d'élevage

Pour les animaux d'élevage, les voies de contamination sont liées à l'ingestion de végétaux, d'eau de boisson, ainsi que de compléments alimentaires. L'ingestion de végétaux contaminés est considérée comme la voie prépondérante. L'ingestion de particules de sol, même si elle est significative est considérée plus négligeable du fait d'une bioaccessibilité faible.

Le transfert aux productions animales est exprimé par un rapport entre l'activité massique ($Bq.kg^{-1}$) ou volumique ($Bq.L^{-1}$) dans le produit animal (viande, lait, œufs) et l'activité quotidienne ingérée ($Bq.j^{-1}$). L'AIEA fournit dans le TRS 472 [21] des valeurs de facteurs de transfert selon le radionucléide et le produit animal (Tableau 8).

Globalement les facteurs de transfert aux produits animaux sont inférieurs à ceux du césium (sauf pour les œufs), mais plus importants que ceux du plutonium.

Tableau 8 : Facteur de transfert à l'équilibre ($j.kg^{-1}$ ou $j.L^{-1}$) pour certains produits animaux d'élevage [valeur moyenne tirée du TRS 472 de l'AIEA]

Lait de vache	$1,8 \cdot 10^{-3}$
Lait de chèvre	$1,4 \cdot 10^{-3}$
Viande de bœuf	$3,9 \cdot 10^{-4}$
Viande de porc	$4,4 \cdot 10^{-2}$
Viande de volailles	$7,5 \cdot 10^{-1}$
Œufs	$1,0 \cdot 10^0$

4.3.5. Transferts dans le milieu aquatique continental

Dans les eaux continentales, la concentration en uranium dissous est contrôlée par le degré d'oxydation du milieu le pH, la dureté et l'alcalinité. L'uranium est relativement plus mobile en conditions oxydantes qu'en conditions anoxiques. En rivière, plus de 90 % de l'uranium peut être associé à la fraction colloïdale (matières en suspension, ou MES), constituée soit par des colloïdes de fer, soit des colloïdes organiques. La fraction colloïdale participe au transport de l'uranium dans le milieu aquatique 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 ‰). Ces particularités s'observent aux niveaux des coefficients de distribution de l'U entre l'eau et les MES. Les valeurs de coefficients de distribution sont comprises entre 20 et 1000 Bq.kg⁻¹ de solide sec par Bq.L⁻¹ d'eau, en moyenne, et présentent des valeurs plus élevées en conditions réductrices.

Comme pour les matières en suspension, la rétention de l'uranium par les sédiments est d'autant plus faible que les conditions sont oxydantes, alcalines et que la teneur en calcium est élevée.

La biodisponibilité de l'uranium pour les organismes aquatiques dépend de sa spéciation (présence d'uranium sous forme d'ion uranyle UO₂²⁺ notamment) et des conditions physico-chimiques du milieu (dureté, alcalinité, pH). Les transferts aux végétaux aquatiques ont été très peu étudiés. Néanmoins, les travaux réalisés sur l'algue *Chlamydomonas reinhardtii* montrent que l'accumulation de l'uranium diminue avec l'augmentation des concentrations de calcium, magnésium, phosphate et ligands organiques dans l'eau et est pH-dépendante.

Le facteur de concentration à partir de l'eau restent faible pour les organismes animaux (crustacés, mollusques, poissons). Chez les poissons, les espèces pélagiques accumulent environ 10 fois moins que les espèces de fond. Les tissus cibles sont les tissus osseux et les reins. Les études de transferts et de toxicité de l'uranium se concentrent principalement sur la détermination des facteurs contrôlant la spéciation. Cependant, peu de données concernent l'impact des fractions particulières sur les transferts, la biodisponibilité et la toxicité de l'uranium. Concernant les facteurs de concentration disponibles dans la littérature, dans les poissons vertébrés les comparaisons avec le césium montrent en moyenne une accumulation plus faible mais légèrement plus importante pour les invertébrés.

4.3.6. Transferts dans le milieu aquatique marin

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 UO₂²⁺ U(VI). Il est peu réactif vis-à-vis des particules sédimentaires. Des campagnes de mesures montrent que la teneur en uranium varie directement avec la salinité. Ceci se traduit, dans les estuaires, par des évolutions de la concentration en uranium selon la teneur eau douce – eau de mer.

Malgré des apports fluviaux continus, l'océan présente des concentrations stables en uranium dû à un piégeage de l'uranium dans les sédiments. Les mécanismes de piégeage les plus efficaces sont rencontrés dans les sédiments riches en matière organique dans lesquels les espèces Uranium(VI) oxydées solubles sont réduites en espèces Uranium(IV) insolubles.

Le transfert de l'uranium aux végétaux marins montre une variabilité importante au sein d'un même groupe d'espèces végétales. Concernant les organismes, la biodisponibilité de l'uranium dépend de sa spéciation ou de sa forme physicochimique. Il y a très peu d'études sur la spéciation de l'uranium chez les organismes marins, probablement en raison de la très faible concentration de cet élément dans l'eau de mer. Cependant, des facteurs de concentration sont disponibles dans la littérature pour des phytoplanctons, des poissons, des crustacés [22]. En comparaison avec le césium, ils sont dans les mêmes ordres de grandeurs. Toutefois, selon certaines publications, les poissons ne concentreraient pas l'uranium alors que ce n'est pas le cas dans d'autres publications.

4.4. Les moyens et les capacités de mesures pour les matrices environnementales et les aliments

Pour l'uranium, deux types de techniques de mesure peuvent être réalisées :

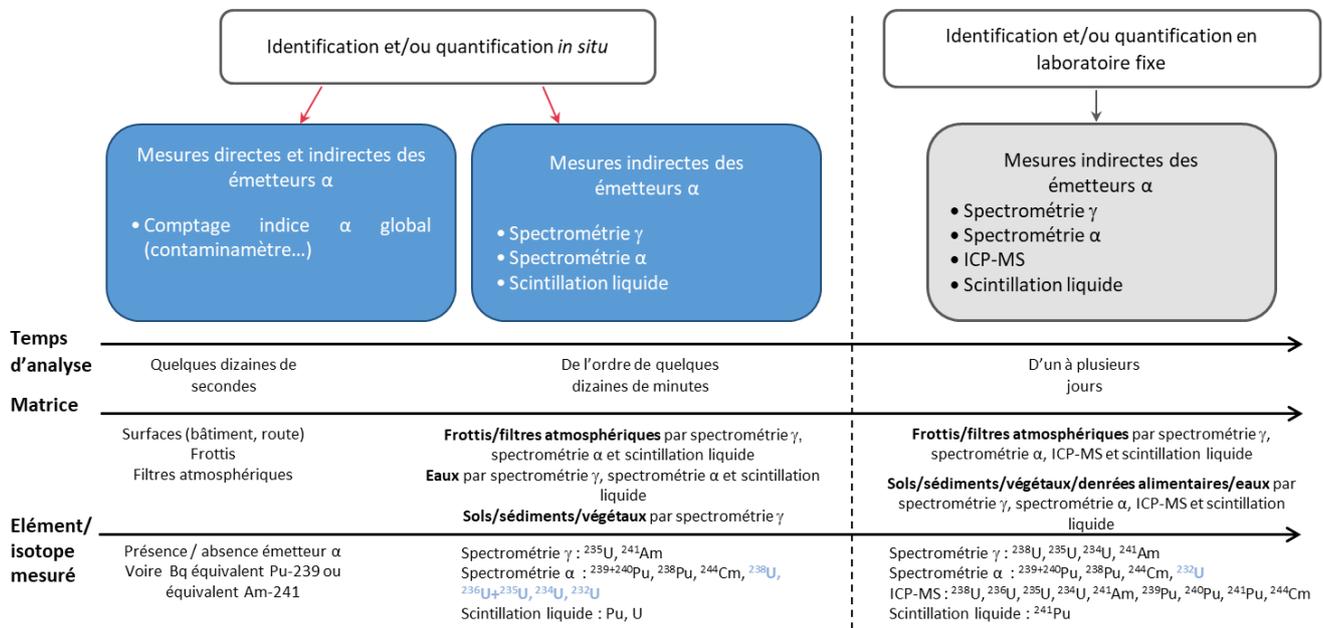
- les techniques nucléaires ou méthodes isotopiques, qui consistent à mesurer l'activité des rayonnements α , β et γ et qui vont fournir un résultat en Bq ;
- les techniques élémentaires ou méthodes pondérales, qui vont fournir une masse d'uranium dans l'échantillon.

4.4.1. Moyens de mesure IRSN

Dans le cadre de ses missions décrites dans la directive interministérielle du 29 novembre 2005 relative à la réalisation et au traitement des mesures de radioactivité dans l'environnement [23], l'IRSN participe à la réalisation des mesures et l'analyse des échantillons à l'aide de ses laboratoires fixes, situés en grande majorité sur le site du Vésinet (78), et des moyens mobiles projetés à proximité de la zone impactée.

Selon le mélange rejeté, notamment lorsque l'uranium 238 et 234 sont majoritaires, malgré l'existence de photons γ pour ces deux isotopes, la mesure sur le terrain ne permettra pas de caractériser rapidement l'ensemble du territoire contaminé. Cela serait envisageable dans l'hypothèse d'un état d'équilibre entre l' ^{238}U et ses descendants émetteurs γ . Comme pour le plutonium, la mesure devra nécessairement se faire en laboratoire fixe pour les matrices telles que les végétaux ou les sédiments. Au-delà de la préparation de l'échantillon et de l'analyse en elle-même, l'acheminement jusqu'au laboratoire contribuera à allonger les délais nécessaires de restitution des résultats.

La figure 6 synthétise les analyses réalisables sur le terrain et en laboratoire pour les isotopes de l'uranium, des informations plus détaillées sont disponibles en annexe 5.



En bleu, les ajouts par rapport au schéma présenté dans le rapport [4]

Figure 6 : Schéma des analyses des émetteurs α réalisables sur le terrain et en laboratoire (Il est entendu par mesures directes, une mesure faite sans prélèvement de matière)

4.4.1.1. La mesure de l'uranium sur le terrain

Sur le terrain, les techniques de mesure de l'uranium sont les mêmes que celles présentées dans le précédent rapport relatif au plutonium [4]. Toutefois du fait notamment de certains de ses descendants ou de l'émission de photons γ de ^{235}U , d'autres techniques de mesure telles la spectrométrie γ peuvent être utilisées.

Pour les équipes déployées sur le terrain et selon le spectre rejeté, des spectromètres γ , des sondes X et des sondes α pourront être utilisées, en gardant toutefois à l'esprit les difficultés liées à la mesure α directe notamment en cas de temps humide comme indiqué dans le rapport plutonium [4]. Par temps sec, l'objectif est de déterminer la présence de radionucléides émetteurs α au-delà de $0,4 \text{ Bq.cm}^{-2}$.

Dans l'hypothèse d'un état d'équilibre entre ^{238}U et ses descendants, la mesure directe via des spectromètres gamma ou la mesure dans les véhicules laboratoires de ses descendants émetteurs γ ($^{234\text{m}}\text{Pa}$ voire ^{234}Th) permettrait de quantifier ^{238}U . L'uranium 235 est caractérisé par différents photons γ qui permettent, en particulier pour de l'uranium 235 enrichi, de le mesurer sur le terrain (mesures directes ou par le biais de prélèvements). De fait, une cartographie de la contamination par des moyens de mesure embarqués pourrait être envisagée (utilisation du débit d'équivalent de dose, de la variation du taux de comptage...).

Afin de vérifier l'isotopie de l'uranium rejeté, essentiellement ^{238}U , $^{235+236}\text{U}$ et ^{234}U , il est possible de réaliser, sur le terrain au sein des véhicules laboratoires, des mesures par spectrométrie α . Ces mesures qui nécessitent au préalable une étape de préparation des échantillons très simplifiée, ne peuvent être réalisées que sur des échantillons de type frottis ou filtres aérosols. Avec un temps de comptage d'environ 30 minutes par échantillon, il est envisageable de réaliser un peu plus d'une dizaine d'échantillons par jour et de quantifier un dépôt de plus de 70 Bq.m^{-2} .

Pour les échantillons d'eau ou les frottis, il est également envisageable de détecter les radionucléides émetteurs α par scintillation liquide. Cette technique de mesure ne nécessite pas d'étape de préparation préalable si ce n'est l'introduction de l'échantillon dans un flacon et l'ajout du liquide scintillant. Comme pour le Pu, cette technique permettra de quantifier une activité α globale au-delà de 200 Bq dans un échantillon.

4.4.1.2. La mesure de l'uranium en laboratoire fixe

En laboratoire, la quantification de l'uranium dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par méthode pondérale soit par méthode isotopique. Selon les techniques employées, l'analyse d'échantillons liquides ou solides peut être effectuée directement ou après traitement de l'échantillon (minéralisation, purification, filtration).

Comme sur le terrain, les mesures par spectrométrie γ et spectrométrie α pourront être utilisées. En laboratoire, la spectrométrie de masse (ICP-MS) pourra également être utilisée. Cette technique, plus rapide que la spectrométrie α mais avec une limite de détection (LD) plus importante, permet un premier screening sans avoir recours à une préparation de l'échantillon. Ces techniques permettent d'obtenir des résultats en 2 jours avec une fréquence assez importante (~ 70 échantillons par jour pour la mesure de l'uranium) avec des limites de détection classiquement atteintes pour ^{238}U , de l'ordre de 10 mBq.L^{-1} pour les matrices liquides et de l'ordre de 1 Bq.kg^{-1} pour les matrices solides via la mesure par spectrométrie α , de l'ordre de $0,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour les matrices solides et de $0,5 \text{ mBq.L}^{-1}$ pour les eaux ou liquides ayant subi un traitement radiochimique, via la mesure par ICP-MS.

Au-delà des techniques classiques, la méthode rapide de mesure couplant une chromatographie ionique (C.I.) et une spectrométrie de masse (ICP-MS) développée par l'IRSN (et présentée dans le rapport plutonium [4]) peut également être utilisée pour les isotopes de l'uranium en présence d'autres radionucléides émetteurs α . Cette méthode permettra l'obtention de résultat de mesure en une journée environ mais sur un nombre limité d'échantillons.

⁴ Contrairement à ce qui est indiqué dans le rapport Pu [4], à la suite de différents exercices tests, ce critère a été revu à la hausse. Ce critère permet d'avoir plus de statistique de comptage que celui initialement indiqué dans le rapport Pu

Les durées indiquées ici concernent uniquement le temps de préparation des échantillons et de mesure, et ne tiennent pas compte du temps de collecte et d'acheminement des échantillons.

4.4.2. Éléments de stratégie de mesure en crise

Comme pour la majorité des isotopes du plutonium, les isotopes de l'uranium sont des radionucléides à émissions α . Toutefois, dans le cas d'un équilibre de l'uranium 238 et de ses descendants radionucléides émetteurs beta-gamma et les émissions γ de l'uranium 235, une cartographie par les moyens de mesure embarqués pourrait être envisagée, notamment en cas de rejet d'uranium enrichi ou de retraitement, pour des territoires où les dépôts s'élèvent au-dessus de la limite de détection. Ces mesures directes des émissions γ ne seront pas forcément suffisantes pour identifier les niveaux recherchés, aussi des mesures de contamination directe des émissions α seront à envisager (cas de surfaces sèches). En cas de temps humide, la mesure directe de contamination surfacique n'étant pas possible, la caractérisation de la contamination des territoires prendra sensiblement plus de temps et nécessitera une stratégie de mesure distincte.

Les stratégies de mesure post-accidentelle en cas de rejet d'émetteurs α majoritaires sont en cours de réflexion et nécessitent d'être testées, les points clefs sont présentés en annexe 7 et synthétisés ci-dessous. L'objectif de la stratégie de mesure de dépôts d'émetteurs α est de déterminer la tache de contamination en s'orientant en premier lieu dans les zones habitées où seront engagées des actions de protection. Deux méthodes seront employées en fonction de l'humidité des sols.

- Par temps sec, la zone où le dépôt α total est supérieur à $0,4 \text{ Bq.cm}^{-2}$ (4000 Bq.m^{-2}) sera recherchée. Quelques points de mesure directe au contaminamètre pourraient être réalisés par heure et par équipes associée à des prélèvements par frottis si la mesure directe est supérieure au critère⁵ de $0,4 \text{ Bq.cm}^{-2}$. Selon l'étendue de la tache de contamination, le temps d'identification minimal serait de 48 à 72 heures pour une zone comprise dans un rayon de 5 km autour de l'installation. La caractérisation du spectre des radionucléides déposés sera réalisée par spectrométrie α sur quelques frottis prélevés dans la zone.
- Par temps humide le comptage direct de l'activité α globale est impossible. Il sera seulement possible d'avoir une identification de présence ou non de contamination. La stratégie serait de réaliser des frottis dans des lieux abrités et ouverts (auvent, préau...); frottis qu'il sera nécessaire de sécher avant de les compter. Cela conduira potentiellement à multiplier par deux les délais de restitution des résultats (2 points de mesure par heure environ). Une autre possibilité serait de réaliser des prélèvements d'eau dans des zones d'accumulation.

Concernant les mesures de végétaux, elles devront être réalisées en laboratoire. Les techniques de mesure employées dépendront des radioéléments en présence. Au-delà du transport des échantillons la restitution des résultats de mesure dépendra de la méthode de mesure employée. Pour de l'uranium pur, la mesure par ICP-MS et par spectrométrie α permettant l'analyse d'un plus grand nombre d'échantillons seront privilégiées.

4.4.3. Les laboratoires hors IRSN potentiellement mobilisables

En cas d'évènement entraînant une situation d'urgence nucléaire ou radiologique, différents acteurs de la mesure seront impliqués (annexe 5 §5.4). Il s'agit des laboratoires agréés par l'ASN, la DGAL, la DGS et la DGGCCRF, cela correspond à moins d'une centaine de laboratoires.

Toutefois tous ces laboratoires n'ont pas les capacités de réaliser de la mesure d'isotopie de l'uranium. Ceux pouvant être effectivement mobilisés se limitent à une vingtaine en comptant les laboratoires de l'exploitant, privés, universitaires et associatifs.

⁵ Ce critère est atteint avec une statistique de comptage suffisante avec une durée d'acquisition en mode intégration courte.

5. L'URANIUM ET L'IMPACT A L'HOMME

Les isotopes de l'uranium naturellement présents dans l'environnement, ^{238}U , ^{234}U et ^{235}U , sont tous émetteurs de rayonnements α auxquels sont associées des raies X de faible énergie. L' ^{235}U a également la particularité d'être émetteur de rayonnement γ (par exemple un photon de 186 keV émis dans 57 % des désintégrations). Comme pour le plutonium, l'impact radiologique de l'uranium sur la santé est essentiellement dû aux effets des rayonnements α qu'il émet lors d'une incorporation dans l'organisme. L'uranium est cependant un métal lourd, c'est-à-dire que, du fait de ses propriétés chimiques, il a la capacité de se bioaccumuler durablement dans l'organisme à un rythme plus rapide que sa dégradation. Dans certains cas, cette accumulation peut induire une toxicité chimique en perturbant le fonctionnement de l'organisme ce qui peut conduire à des effets délétères sur la santé.

Pour plus de précision sur les paragraphes qui vont suivre, le lecteur pourra se reporter aux annexes 8 à 11.

5.1. Comportement dans l'organisme et toxicité chez l'homme

5.1.1. Devenir de l'uranium après incorporation

Il existe trois principales voies de contamination par l'uranium : l'ingestion, l'inhalation et les plaies contaminées. Les conditions d'oxydoréduction, le pH, la composition ionique ou la présence de ligands particuliers (notamment ceux d'origine alimentaire) peuvent influencer sur la forme chimique de l'uranium dans l'organisme et favoriser ou non son absorption. Le comportement d'un composé de l'uranium dans l'organisme est indépendant de son degré d'enrichissement mais sa solubilité, et donc son absorption par l'organisme, dépend de sa valence. Les formes tétravalentes de l'uranium (dont UO_2 , U_3O_8 et UF_4) sont ainsi moins solubles que les formes hexavalentes (dont UF_6 et UO_2F_2).

La nomenclature de la CIPR distingue les formes :

- rapidement solubles (sous l'appellation « Fast », ex : UF_6 , nitrate d'uranyle...) correspondant à une absorption rapide et complète du radionucléide avec une demi-vie de 30 min,
- lentement solubles (sous l'appellation « Slow », ex : UO_2) correspondant à une absorption de 1 % avec une demi-vie de 6 h ,
- et tous les intermédiaires (sous l'appellation « Moderate », ex : diuranate d'ammonium, UF_4 , débris d'U appauvri d'origine militaire...), correspondant à une absorption de 20 % avec une demi-vie de 6 h.

Lorsque l'uranium est inhalé, le poumon est le premier organe cible. Les composés solubles vont quitter les poumons rapidement pour atteindre la circulation sanguine puis les reins et les os où ils s'accumulent. Les composés d'uranium insolubles incorporés par inhalation demeurent principalement au niveau des voies respiratoires en raison de leur rétention physique et peuvent de fait entraîner des doses importantes.

Après ingestion, une part de l'uranium passera la barrière digestive pour être absorbée dans le sang et le reste sera directement excrété dans les selles. Après ingestion, la part de l'uranium absorbée dans le sang varie de 0,1 % à 2 % [24][25] selon l'espèce et la solubilité.

Via les plaies contaminées, l'uranium est directement absorbé par le sang.

Une fois passée dans le sang, la majorité de l'uranium incorporé est excrétée via les urines. Les études réalisées chez les animaux mettent en évidence une excrétion urinaire de plus de 60 % de l'uranium absorbé dans les premières 24 h, 10 % supplémentaire étant excrétés dans les 5 jours suivants [26]. Du fait de son comportement proche du calcium, la part d'uranium présente dans le sang qui n'est pas excrétée se dépose au niveau des os et des reins, et dans une moindre mesure dans le foie. Des études montrent que 40 à 80 % de l'uranium sous forme

soluble absorbé dans le sang, par ingestion ou exposition cutanée, se retrouve au niveau du squelette ou des reins alors que l'inhalation entraîne des taux plus élevés de rétention totale, jusqu'à 95 % [26][28][29].

L'uranium peut également pénétrer dans le système nerveux central même si les taux retrouvés restent très faibles comparativement aux reins ou aux os.

5.1.2. La toxicité de l'uranium

Après un rejet, l'uranium se trouvera dans l'environnement sous plusieurs formes chimiques (oxydes, chlorures, fluorures et nitrates) et avec diverses compositions isotopiques (naturel, appauvri et enrichi). Ce sont les premiers facteurs qui influencent la toxicité et les effets néfastes de l'uranium. La toxicité de l'uranium dépend également de la voie et de la durée d'exposition ainsi que de la taille des particules incorporées.

Il y a peu d'études qui comparent directement la radiotoxicité et la chimiotoxicité de l'uranium en utilisant les mêmes paramètres et les mêmes modèles expérimentaux. De plus, la séparation de ces effets est difficile notamment parce que les rayonnements α émis par l'uranium et sa chimiotoxicité agissent dans un environnement cellulaire proche.

Parmi les isotopes de l'uranium, le plus radiotoxique est l' ^{234}U avec une activité spécifique de $2,32 \cdot 10^8 \text{ Bq.g}^{-1}$ d'U de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celles de l' ^{235}U ($8,0 \cdot 10^4 \text{ Bq.g}^{-1}$ d'U) et de l' ^{238}U ($1,24 \cdot 10^4 \text{ Bq.g}^{-1}$ d'U). Il en résulte que la radiotoxicité de l'uranium varie sensiblement avec son degré d'enrichissement. La présence éventuelle d'autres produits dans le mélange d'uranium issu du retraitement peut également augmenter cette radiotoxicité.

La chimiotoxicité des formes solubles de l'uranium se manifeste principalement au niveau des organes où il s'accumule (rein et squelette). Du fait de la rétention des composés insolubles dans les poumons, il est admis par la communauté scientifique que les effets pulmonaires sont principalement dus aux propriétés radiologiques de l'uranium alors que les effets rénaux de l'uranium sont attribués à ses propriétés chimiques. En général, les effets chimiques sont observés à court-terme après exposition, alors que les effets liés à la carcinogénicité sont observés sur le long-terme.

5.1.3. Les effets déterministes

L'UNSCEAR [31] a rappelé que le rein était l'organe cible le plus sensible à la toxicité chimique de l'uranium, le risque étant une diminution de la capacité de filtration rénale. Cependant, il est à noter que cet effet n'est pas toujours détecté après une exposition chronique à faible niveau.

Des effets sur le métabolisme et la croissance osseuse peuvent également être observés chez l'animal, suite toutefois à de fortes expositions.

Chez l'Homme, les observations disponibles à ce jour ne permettent pas de conclure fermement à l'existence de pathologies associées à l'exposition chronique à l'uranium. Toutefois, les résultats observés sur les expositions à des formes rapidement solubles et insolubles (par inhalation), s'ils ne sont pas statistiquement significatifs à ce jour dans les quelques études solides existantes, semblent cohérents avec les possibles effets attendus compte tenu de la biocinétique de ces formes chimiques (effets rénaux et sur l'os pour les formes solubles).

5.1.4. Les effets stochastiques à long terme

Plusieurs études expérimentales décrivent l'uranium comme étant cancérigène, en fonction de la voie d'exposition et la solubilité du composé, sans que toutefois la question puisse être définitivement tranchée. Une possible association entre l'exposition à l'uranium et risque de cancer du poumon a été suggérée par plusieurs études, notamment des études épidémiologiques menées sur les travailleurs de l'industrie du nucléaire exposés par

inhalation à des formes peu solubles de l'uranium, mais les résultats disponibles à ce jour n'ont pas été jugés suffisamment cohérents pour démontrer une association causale.

Pour ce qui concerne l'exposition chronique à des formes solubles de l'uranium, les observations épidémiologiques disponibles à ce jour ne permettent pas encore de conclure fermement à l'existence de pathologies associées. Toutefois, les résultats disponibles sur les effets rénaux (néphropathie ou cancer) et osseux dans les quelques études solides existantes, s'ils ne sont pas statistiquement significatifs (ou pas attribuables sans ambiguïté à l'uranium, plutôt qu'à un mélange d'expositions radiologiques) semblent cohérents avec les possibles effets attendus compte tenu de la biocinétique de ces formes chimiques. Des associations statistiquement significatives sont par ailleurs rapportées via un nombre encore limité d'études épidémiologiques avec des pathologies moins attendues a priori : cancers hématopoïétiques dont le myélome multiple, diabète, pathologies de l'appareil circulatoire. Ces associations demandent à être explorées dans davantage d'études concernant des populations différentes afin de pouvoir juger de la réplicabilité ou du moins de la cohérence de ces résultats. Le suivi des études de cohortes doit par ailleurs être poursuivi, leurs résultats étant susceptibles d'évolutions pour ce qui concerne la survenue de pathologies chroniques.

Une augmentation du risque de cancer du poumon avait été observée dans une étude ancienne chez le chien exposé à des doses importantes par inhalation pendant 5 ans (6-7 Gy au poumon). Une autre étude réalisée chez des rats exposés par inhalation à des doses croissantes de minerai d'uranium pendant 65 semaines (0,8 à 1,6 Gy) allait dans le même sens. À contrario, aucune tumeur n'a été observée chez le singe pour une exposition similaire.

De nombreuses études expérimentales sur l'évaluation de la toxicité et de la cancérogénicité de l'uranium sont toujours en cours au Canada, en Chine et aux Etats-Unis afin de combler les lacunes de connaissances dans ce domaine. En France, le projet UKCAN (Uranium Kidney CANcerous effect in mice) a été développé à l'IRSN afin d'apporter des connaissances scientifiques précises sur l'hypothèse d'une augmentation du risque de développement d'un cancer du rein à la suite d'une exposition à l'uranium, en lien avec des données épidémiologiques récentes [32].

5.2. Les moyens de mesures de la contamination dans l'organisme à l'IRSN

En cas d'évènements entraînant des rejets radioactifs dans l'environnement, un contrôle des personnes exposées doit être mis en place. L'IRSN dispose pour ces contrôles de moyens qui seront envoyés sur le terrain à proximité du site accidenté et de laboratoires dédiés à la mesure chez l'homme sur son site du Vesinet (78).

5.2.1. Les mesures de contamination interne

En cas d'exposition aux radioéléments rejetés, deux types d'examens permettent de détecter et de quantifier une contamination interne chez un individu :

- la mesure de l'activité dans les excréta,
- la mesure directe dans l'organisme par anthroporadiométrie.

Pour des rejets d'uranium, la surveillance se fait essentiellement par des mesures sur les excréta. Les contaminations internes par l'uranium 235 et l'uranium 238 sont également détectables par anthroporadiométrie mais uniquement lorsque les activités incorporées sont suffisamment importantes. Même pour les mesures basées sur la quantification des descendants il faut des contaminations suffisamment importantes pour être détectables.

5.2.1.1. Mesure dans les excréta

La mesure dans les excréta est la mesure de référence à la suite d'une contamination interne par des isotopes émetteurs α . L'uranium peut être identifié et quantifié dans les selles et les urines soit à partir de sa masse (par mesure ICP-MS) soit à partir de ses émissions radioactives (par spectrométrie α)

Ces différentes méthodes de mesures sont très sensibles et permettent de détecter des quantités d'uranium très faibles dans les excréta, de l'ordre du millibecquerel par litre par spectrométrie α , voire moins pour des temps d'analyse plus longs, et de l'ordre de quelques nanogrammes par litre par ICP-MS.

Cependant pour l'obtention des résultats par les analyses radiotoxicologiques, la préparation et la mesure d'échantillons nécessitent un délai minimum de deux semaines après réception des prélèvements par le laboratoire pour les mesures par spectrométrie α et de deux jours pour les mesures par ICP-MS.

Les composés d'uranium insolubles incorporés par inhalation demeurent principalement au niveau des voies respiratoires (passage limité dans le sang), néanmoins la surveillance peut se faire sur les analyses urinaires compte tenu de leur grande sensibilité.

5.2.1.2. Mesure par anthroporadiométrie

Les techniques d'anthroporadiométrie permettent de mesurer les émissions γ ou X avec des limites de détection dépendant de l'énergie et de l'intensité des rayonnements.

Du fait de l'émission de photons par l'uranium 235, il peut être mesuré par anthroporadiométrie au niveau des poumons ou au niveau du corps entier. L'uranium 238 peut également être détecté par le biais de la mesure de son descendant, le thorium 234.

5.2.2. L'estimation de la dose par l'interprétation des mesures

Les mesures dans les excréta ou par anthroporadiométrie fournissent une estimation de l'activité présente dans l'organisme ou excrétée à un instant donné. À partir de ces résultats, la dose pourra être évaluée selon les caractéristiques de la contamination et de l'individu concernés à l'aide des modèles biocinétiques et dosimétriques de la CIPR [26].

Concernant l'uranium, la CIPR considère dans son modèle biocinétique les points suivants :

- Après inhalation, les formes les plus solubles, tels que l'hexafluorure d'uranium (UF_6) vont rapidement passer la barrière pulmonaire pour entrer dans le sang alors que les formes moins solubles vont rester plus longtemps à ce niveau entraînant des doses au poumons plus élevées.
- Après ingestion, l'absorption de l'uranium dans le tube digestif est faible et dépend également de sa forme physico-chimique. Pour les formes relativement insolubles (par exemple l' UO_2 ou l' U_3O_8), la fraction absorbée retenue par la CIPR est de 0,002 alors qu'elle est de 0,02 pour les formes plus solubles.
- Une fois passé dans le sang, la CIPR considère que la biocinétique ne dépend plus de la solubilité initiale du composé incorporé. D'après le modèle, la majeure partie de l'activité est rapidement excrétée dans les urines (plus de 60 % au cours des premières 24 h après passage dans le sang). Le reste de l'activité se dépose dans le squelette (15 %), les reins (12 %) et dans une moindre mesure dans le foie (1,5 %). À long terme l'uranium est essentiellement retenu dans le squelette.

L'uranium étant naturellement présent dans l'environnement et dans l'alimentation, il est retrouvé naturellement dans les urines et les selles de tous les individus. Il est donc nécessaire de disposer de valeurs de référence pour les taux de base des excréta d'uranium liés aux apports alimentaires hors accidents. Pour les personnes du public, des valeurs sont disponibles dans la littérature et dans des documents nationaux et internationaux. En particulier, l'étude française la plus récente [34] indique une concentration moyenne dans les urines de l'adulte

de 0,007 $\mu\text{g.L}^{-1}$. À titre d'information, d'après l'OMS, sur la base de données internationales, l'apport quotidien en uranium par ingestion alimentaire est estimé entre 1 et 4 $\mu\text{g.j}^{-1}$ [35].

5.2.3. Principes et capacités de mesure chez l'homme

5.2.3.1. Les capacités de l'IRSN

L'IRSN dispose de moyens de mesure fixes et mobiles permettant de détecter la contamination interne individuelle par l'uranium.

Pour la mesure par anthroporadiométrie, l'IRSN utilisera ses deux Laboratoires Mobiles Anthroporadiométriques (LMA) équipés de détecteurs au germanium ou son laboratoire fixe au Vésinet. Les véhicules légers ou shelters équipés de détecteurs de type NaI, utilisables en cas de rejet de produits de fission, ne sont pas adaptés pour des rejets d'uranium. Dans les laboratoires fixes comme mobiles, la limite de détection dépendra du temps de comptage. Toutefois, les limites de détection de ces radioisotopes sont élevées, de l'ordre de 10 Bq pour l'uranium 235 au niveau pulmonaire dans l'installation fixe du Vésinet. Les mesures anthroporadiométriques ne permettent de détecter, contrairement aux mesures radiotoxicologiques, que des contaminations internes relativement importantes en uranium ou ses descendants.

La mesure des excréta sera réalisée au Vésinet au laboratoire de Biologie médicale via l'utilisation de spectromètres α ou d'ICP-MS. Les limites de détection dans les urines sont comprises entre 0,66 et 1,4 mBq.L^{-1} pour la spectrométrie α et entre 0,009 et 30 ng.L^{-1} pour l'ICP-MS pour les trois principaux isotopes de l'uranium. Dans les selles, les limites de détection sont comprises entre 0,69 et 0,88 mBq.g^{-1} de cendres pour la spectrométrie α . Elle est de 0,008 mBq.g^{-1} de cendres pour l'ICP-MS.

Après la réception des échantillons (prélèvements de 24 h) les premiers résultats sont attendus sous deux jours pour les échantillons mesurés à l'aide de l'ICP-MS et sous deux semaines pour les échantillons mesurés par spectrométrie α . L'IRSN envisage aujourd'hui à partir de ce délai de rendre de l'ordre de 100 résultats par jour pour les mesures par ICP-MS et de 30 résultats tous les trois jours pour les mesures par spectrométrie α et ce pour une affectation exclusive du laboratoire à la gestion de l'évènement.

5.2.3.2. Principes de mesure en situation post-accidentelle

Les mesures radiotoxicologiques sont les analyses les plus adaptées pour la détection des contaminations internes, même faibles, par de l'uranium. Toutefois, l'obtention des résultats nécessite un délai minimum comprenant le temps nécessaire pour le recueil, la préparation et la mesure des échantillons.

Le résultat après comptage anthroporadiométrique est rapidement disponible après la mesure mais moins sensible que les mesures radiotoxicologiques et cette technique ne s'applique qu'à des niveaux de contaminations internes importants.

Pour estimer les expositions internes post-accidentelles, c'est-à-dire les contaminations qui seraient dues au séjour dans un territoire impacté par les retombées des rejets, les mesures radiotoxicologiques sur les excréta seront *a priori* les plus adaptées compte tenu de la voie d'exposition potentielle prépondérante à savoir l'ingestion de produits contaminés et du niveau relativement faibles des éventuelles contaminations. Les analyses urinaires seront à privilégier compte tenu de la grande sensibilité de cette mesure et de la relative facilité du recueil des urines. Toutefois, des mesures dans les selles pourraient être indiquées car elles permettent dans certains cas de dépister des expositions plus faibles que les mesures urinaires. Dans tous les cas, le choix de la technique de la mesure sera à adapter à la composition isotopique des rejets (en particulier à l'éventuelle enrichissement de l'uranium).

La mesure positive d'un radioélément dans les excréta permet de détecter et de quantifier une contamination passée. Cependant, elle ne permet pas de déterminer par quelle voie (inhalation ou ingestion) ou à quel moment

la personne a incorporé la contamination. En particulier, en phase post-accidentelle, une contamination interne détectée dans les urines pourra être due à une exposition lors de la phase d'urgence c'est à dire par inhalation lors du passage du panache dans l'atmosphère, ou à des contaminations par ingestion de produits contaminés après la fin de la situation d'urgence radiologique. C'est pourquoi il sera important, afin de distinguer ces deux situations de contamination, de disposer, pour les personnes susceptibles d'avoir été impactées par les rejets atmosphériques, de mesures individuelles réalisées à l'issue des rejets.

5.2.4. Les traitements à la suite d'une contamination par l'uranium

En cas de contamination cutanée, une décontamination sera réalisée par un lavage de la peau avec de l'eau et du savon ou par un produit spécifique tel que la crème Cevidra® au calixarène⁶.

En cas de contamination interne par des quantités d'uranium justifiant la mise en route d'un traitement décorporant, les recommandations nationales et internationales proposent la prescription de bicarbonate de sodium en perfusion intra-veineuse (IV) lente [36][37]. Le but de ce traitement décorporant est d'accélérer l'excrétion des radionucléides. Une fois mis en route, le schéma et la durée du traitement sont adaptés en fonction des résultats des analyses radiotoxicologiques de surveillance.

5.3. Évaluation de l'impact radiologique et chimique

Contrairement à d'autres radioéléments, l'uranium va se bioaccumuler durablement dans l'organisme, le risque associé à l'uranium est donc à la fois chimique et radiologique. Deux types d'évaluation doivent donc être menés pour exprimer le risque lié à l'exposition à l'uranium.

Les estimations des doses radiologiques permettront, en les comparant aux niveaux de référence ou valeurs-repères définis par le code de la santé publique ou proposés par le CODIRPA, de définir les territoires où des actions de protection sont à envisager. Pour apprécier la nécessité d'envisager des mesures de protection au regard de l'évaluation de l'impact chimique résultant de l'exposition à l'uranium, aucun seuil ou valeur repère spécifique aux situations post accidentelles n'est défini à ce stade.

Pour évaluer l'exposition des populations en phase post-accidentelle, les voies d'exposition à considérer sont, pour l'estimation de l'impact radiologique comme pour l'estimation de l'impact chimique, l'exposition interne par ingestion de denrées alimentaire, l'exposition interne par inhalation des particule remises en suspension, l'exposition interne par ingestion involontaire de sol et de poussière, et enfin l'exposition externe résultant de l'irradiation par les dépôts pour l'estimation de l'impact radiologique.

L'évaluation des impacts (radiologiques ou chimiques) associés aux différentes voies d'exposition impliquent de nombreux paramètres déjà présentés et analysés dans le rapport plutonium [4]. Ces paramètres sont rappelés dans le paragraphe 11.2 de l'Annexe 11.

5.3.1. Méthode d'évaluation de l'impact radiologique

Le tableau 9 regroupe les doses efficaces par unité d'activité incorporée (DPUI) [39] associées à ²³⁴U, ²³⁵U et ²³⁸U pour les voies d'exposition ingestion et inhalation.

Les DPUI inhalation dépendent du type d'absorption de l'élément incorporé. Une absorption de type F traduit une absorption très rapide de l'élément vers le sang contrairement au type S, qui est, pour l'impact radiologique consécutif à une inhalation, plus pénalisant. La CIPR [39] propose une correspondance entre la forme physico-

⁶ Crème lavante et décontaminante au calixarène sous brevet IRSN <https://www.cevidranuclear.com/fr/produit>

chimique de l'uranium incorporé et le type d'absorption à utiliser (tableau 10). Toutefois, elle recommande l'utilisation d'une absorption de type M lorsque qu'aucune information spécifique sur le composé n'est disponible.

Tableau 9 : DPUI Inhalation et ingestion pour ^{234}U , ^{235}U et ^{238}U (dose corps entier) [39]

Voie d'incorporation	Adulte				Enfant 1-2ans			
	Ingestion Sv/Bq	Inhalation Sv/Bq			Ingestion Sv/Bq	Inhalation Sv/Bq		
		S	M	F		S	M	F
Solubilité	-	S	M	F	-	S	M	F
^{234}U	4,90E-8	9,40E-6	3,50E-6	5,60E-7	1,30E-7	2,90E-5	1,10E-5	1,40E-6
^{235}U	4,70E-8	8,50E-6	3,10E-6	5,20E-7	1,30E-7	2,60E-5	1,00E-5	1,30E-6
^{238}U	4,50E-8	8,00E-6	2,90E-6	5,00E-7	1,20E-7	2,50E-5	9,40E-6	1,30E-6

Tableau 10 : Formes d'uranium selon leur solubilité [40][41]

S (slow)	M (moderate)	F (fast)
UO ₂	UO ₃	UF ₆
U ₃ O ₈	UF ₄	UO ₂ F ₂
	UCl ₄	UO ₂ (NO ₃) ₂

5.3.2. Principes de l'évaluation de l'impact chimique

Le cadre réglementaire ainsi que les grands principes méthodologiques de la démarche de prévention et de gestion des risques sanitaires des installations classées soumises à autorisation sont décrits dans la circulaire du 9 août 2013 [43]. Cette circulaire précise notamment les conditions d'évaluation et de réalisation de méthodes d'interprétation de l'état des milieux (IEM) et d'évaluation des risques sanitaires (ERS). L'IEM est une évaluation de la situation actuelle des milieux grâce à l'interprétation des mesures réalisées dans ces dit milieux. L'ERS [42] est une étude visant à caractériser et estimer de manière qualitative et quantitative l'impact des substances toxiques rejetées sur les individus potentiellement exposés. Ces principes, ainsi que les méthodes d'évaluation et les valeurs de référence sont développés dans le guide de l'INERIS mis à jour en 2021 [42]. Dans son guide l'INERIS précise en citant la circulaire du 9 août 2013 [43] que « la démarche d'ERS ne doit être menée que sur des émissions maîtrisées et quantifiées » en indiquant que dans des situations accidentelles, les modélisations qui peuvent être réalisées sont peu exploitables, du fait d'une insuffisance de caractérisation des rejets. L'INERIS recommande la mise en œuvre d'une IEM et l'application du « guide post-accident » [45] en référence à la circulaire du 20 février 2012 [44]. Au-delà d'une proposition d'organisation des services dans une telle situation ce guide identifie les mesures à réaliser pour caractériser au mieux l'état de l'environnement toutefois aucune méthodologie de déclinaison opérationnelle de l'évaluation de l'impact chimique en situation post accidentelle n'est abordée.

A l'heure actuelle, aucune méthodologie d'ERS spécifiquement dédiée aux situations post-accidentelles, ni de seuils d'exposition dédiés à ces situations, a fortiori pour l'uranium, n'est disponible. En cohérence avec l'ensemble du corpus documentaire cité précédemment ainsi qu'avec le guide méthodologique de l'IRSN [46], la méthodologie mise en œuvre dans le cadre de la réponse à cette saisine est réalisée sur la base de la méthodologie ERS.

L'évaluation de l'impact chimique repose sur la caractérisation toxicologique des substances auxquelles la population est exposée, sur la définition de scénarios d'exposition et sur le calcul d'indices de risque (IR). L'indice de risque est un Quotient de Danger (QD) pour les substances à seuil d'effet comme l'uranium et un Excès de Risque Individuel (ERI) pour les substances sans seuil d'effet. L'indice de risque permet d'apprécier dans quelle mesure un effet est susceptible d'apparaître. Ces effets peuvent être par exemple l'apparition de lésions, de

cancers, d'effets nocifs sur la reproduction. Plus d'informations relatives à cette approche sont présentées en annexe 10.

La circulaire du 9 août 2013 [43] indique que « les valeurs de référence retenues au niveau international par les organismes ou agences en charge de la protection de la santé sont un Quotient de danger (QD) inférieur ou égal à 1 pour les effets à seuil, et un Excès de Risque Individuel (ERI) inférieur ou égal à 10^{-5} pour les effets sans seuil. » il est en outre rappelé que « ces valeurs doivent être utilisées sur l'ensemble du territoire français, il n'est pas acceptable de les moduler. Un risque sanitaire dont le résultat est supérieur à ces valeurs de référence n'est pas acceptable. Pour des valeurs approchant ces seuils, le résultat doit être apprécié en fonction des incertitudes inhérentes à la méthodologie d'évaluation des risques sanitaires et des enjeux ».

L'INERIS précise dans son guide [42] que « si les indicateurs dépassent ces valeurs [...] l'évaluation ne peut pas démontrer l'absence de risque préoccupant attribuable aux émissions de l'installation [...] sur la base des émissions et des hypothèses décrites ». Lorsque les indices de risque dépassent les valeurs repères, l'INERIS préconise plusieurs actions, dont notamment le renforcement de la surveillance et l'identification des enjeux (ex : populations, voies d'expositions à protéger...).

Pour définir le lien entre une exposition à une substance chimique et l'apparition d'un effet ou une probabilité d'apparition d'effet sur un organisme, une Valeur Toxicologique de Référence (VTR) est utilisée. Il existe des VTR pour les substances à seuil et pour les substances sans seuil. L'uranium est identifié comme une substance à seuil d'effet, de fait, seuls des QD seront calculés.

La toxicité chimique de l'uranium est indépendante du mélange isotopique rejeté, et donc de l'enrichissement en ^{235}U en particulier. Elle dépend en revanche de la forme physico-chimique de la substance.

Les scénarios retenus pour l'évaluation de l'impact chimique doivent tenir compte de la nature de la pollution (ex : atmosphérique, liquide), des usages locaux et de la sensibilité des populations potentiellement impactées. Les scénarios d'exposition et les voies d'exposition sont identiques à ceux considérés pour l'évaluation de l'impact radiologique. Sur cette base, l'évaluation des doses et concentration dans les milieux d'exposition est estimée par modélisation : concentrations volumiques d'exposition calculées pour l'inhalation ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), donc sans prise en compte de notion de classe d'âge ni prise en compte de débit respiratoire, et doses journalières d'exposition (DJE, incorporation journalière par ingestion alimentaire et ingestion involontaire, exprimée en $\mu\text{g}\cdot\text{kg}_{\text{individu}}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$) calculées pour l'ingestion. Les indices de risques sont ensuite calculés comme le rapport des valeurs obtenues aux VTR appropriées.

Pour l'exposition à des substances chimiques, il est courant de distinguer différents modes d'exposition : l'exposition aiguë, l'exposition chronique et l'exposition subchronique. L'exposition aiguë correspond à une exposition de quelques secondes à quelques jours, l'exposition subchronique à une exposition de quelques jours à quelques mois et l'exposition chronique à une exposition de quelques années à la vie entière.

Afin de choisir la VTR, pour les différentes substances chimiques, l'INERIS met à disposition des évaluateurs une plateforme recensant les VTR⁷ disponibles [47] et a publié en 2022 une synthèse des VTR à retenir pour différentes substances d'intérêt [48]. Concernant l'uranium, les VTR retenues par l'INERIS [49] sont présentées dans le tableau 11. Elles concernent des expositions chroniques et subchroniques, pour les voies inhalation et ingestion, pour des composés solubles et insolubles.

L'uranium n'est pas classé comme chimiquement cancérigène pour l'homme. Par conséquent, seules des VTR à seuil sont recommandées.

⁷ Une valeur toxicologique de référence (VTR) est une grandeur permettant de définir le lien entre une exposition à une substance chimique et un effet toxique ou une probabilité d'effet toxique sur un organisme.

Tableau 11 : Valeurs toxicologiques de référence (VTR) recommandées par l'INERIS pour l'uranium [48][49]

Exposition par inhalation			
Effets à seuil	subchronique	soluble	0,1 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
		insoluble	2 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
	chronique	soluble	0,04 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
		insoluble	0,8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
Exposition par ingestion			
Effets à seuil	Aiguë	soluble	2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$
	subchronique	soluble	0,2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$
	chronique	soluble	0,2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$

Pour l'ingestion, les VTR recommandées par l'INERIS sont identiques quels que soient les modes d'exposition, chronique comme subchronique. A noté toutefois qu'elles le sont pour les formes solubles uniquement. En revanche pour la voie inhalation, les VTR sont différentes (facteur de l'ordre de 2) suivant que le mode d'exposition est chronique ou subchronique. Pour la voie inhalation il importe donc de déterminer dans quelle mesure une exposition post-accidentelle relève d'une exposition chronique ou subchronique.

Concernant l'exposition des intervenants, il n'existe pas dans la réglementation française de valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP⁸) pour l'uranium. Plusieurs organismes (OMS, OSHA, CIPR) retiennent comme limite pour l'exposition respiratoire aux formes solubles de l'uranium pour les travailleurs la valeur de 50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Cette valeur est applicable au cas d'une exposition chronique, de l'ordre de 8 heures par jour.

5.3.3. Exposition des populations à un rejet d'uranium (étude de cas)

Compte tenu du caractère à la fois radiotoxique et chimiotoxique de l'uranium, la démarche d'évaluation de l'impact des dépôts formés à la suite d'un rejet accidentel doit considérer les impacts chimiques en complément des impacts radiologiques.

Cinq scénarios de rejet d'uranium ont été étudiés avec pour objectif de comparer l'évaluation de l'impact radiologique et l'évaluation de l'impact chimique. Les conséquences pour la phase post accidentelle ont été évaluées en un point pour un rejet arbitraire de 100 kg d'uranium suivant les différentes compositions isotopiques présentées dans le tableau 2. Une synthèse de ces travaux est présentée en annexe 11.

Quelle que soit l'évaluation réalisée (chimiotoxique ou radiologique), les paramètres de calcul sont les mêmes à savoir le régime alimentaire des populations, les taux de remises en suspension ou les quantités de sol et de poussières ingérées.

5.3.3.1. Évaluation de l'impact radiologique

Les évaluations dosimétriques pour les cinq mélanges considérés sont détaillées au paragraphe 11.3 de l'annexe 11.

Il apparait que l'enrichissement de l'uranium a un impact significatif sur les doses estimées : plus l'uranium est enrichi, plus les doses efficaces calculées sont importantes. En effet, l'enrichissement en ²³⁵U implique également une augmentation de la teneur en ²³⁴U, et, même si la contribution massique de ²³⁴U dans les spectres considérés

⁸ La valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP) représente le niveau maximal de concentration d'un polluant, au-delà duquel une exposition professionnelle présente un risque pour la santé humaine.

reste faible, il est, du fait de son activité spécifique bien plus élevée que celle des autres isotopes de l'uranium, le principal contributeur à la dose efficace, quelle que soit la voie d'exposition considérée.

Concernant le vieillissement de l'uranium, s'il a un impact sur l'activité totale ou sur la mesurabilité, notamment du fait de l'apparition de descendants émetteurs β et γ , il apparaît avoir un impact très limité sur la dose efficace.

Concernant les contributions respectives des voies d'expositions, elles sont semblables pour l'ensemble des scénarios de rejet considérés ici. L'évaluation réalisée montre que :

- L'exposition externe aux dépôts est négligeable par rapport aux autres voies d'exposition même en cas d'uranium vieilli ;
- L'ingestion de denrées alimentaires est la voie d'exposition prépondérante l'année suivant les rejets avec une contribution d'environ 80 à 90 % à la dose efficace totale selon la population concernée. Cette voie d'exposition reste prépondérante pour l'adulte la deuxième année. Elle est du même ordre de grandeur que l'exposition par ingestion de sol pour l'enfant de 1 an à 2 ans la deuxième année ;
- Du fait de la période de décroissance radioactive élevée des uraniums, et en supposant une faible évolution de la contamination dans les sols (bien que l'uranium soit relativement mobile) ainsi qu'un coefficient de remise en suspension constant au cours du temps, les doses calculées pour l'ingestion involontaire de sol et de poussières et pour l'inhalation des particules remises en suspension sont quasi constantes au cours des deux années suivant le rejet ;
- L'ingestion involontaire de sol et de poussière est une voie d'exposition secondaire pour l'adulte ; pour l'enfant, elle est secondaire la première année suivant les rejets, mais représente environ la moitié de la dose totale la deuxième année suivant les rejets ;
- L'inhalation par remise en suspension est une voie d'exposition secondaire pour l'ensemble des classes d'âge et pour les deux années qui suivent les rejets ;

Certaines différences d'avec le cas du plutonium méritent d'être soulignées :

- Le coefficient de dose par inhalation pour l'uranium 234 est inférieur d'un ordre de grandeur au coefficient du plutonium 239, de fait, à paramètres de calculs équivalents la dose inhalation sera d'autant plus faible ;
- Dans l'environnement, l'uranium est plus mobile que le plutonium. A dépôt équivalent, l'activité en uranium dans les denrées sera plus importante que l'activité en plutonium. D'où une part de la dose ingestion plus importante pour l'uranium que pour le plutonium.

Pour les mélanges isotopiques considérés dans ce cas d'étude, les activités calculées dans les denrées ne dépassent pas les valeurs de NMA pour la famille des radionucléides de période supérieure ou égale à 10 jours, à l'exception, pour le cas d'un uranium enrichi, dans des produits maraîchers, durant quelques jours.

5.3.3.2. Évaluation de l'impact chimique

D'un point de vue chimiotoxique, l'uranium est identifié comme une substance à seuil d'effet. Il convient donc d'évaluer un quotient de danger (QD) sur la base d'une dose journalière d'exposition moyennée sur une période donnée. L'INERIS précise que la période d'exposition « doit correspondre à la plus faible durée pour laquelle l'effet étudié peut s'exprimer. Si le niveau d'exposition varie en fonction du temps, le niveau de risque doit alors être évalué sur la période d'exposition de durée où la concentration inhalée ou la dose d'exposition est la plus forte » [50].

Le calcul des expositions directement associées au sol (ingestion involontaire de sol et inhalation des particules remises en suspension) peut être assimilé à celui d'une exposition chronique à un flux constant. En effet, en l'absence de migration significative de l'uranium vers les horizons sous-jacents du sol, et compte tenu des demi-vies très longues des isotopes de l'uranium, la contamination de la surface du sol peut être considérée, en première approche, comme constante sur les premières années suivant le rejet. Le calcul des doses et des concentrations d'exposition associées ne présente par conséquent de spécificité particulière par rapport à la

méthodologie radiologique. Pour un dépôt donné, ce cas d'étude indique que le quotient de danger associé à l'ingestion involontaire est supérieur à celui associé à l'inhalation des particules remises en suspension.

Pour l'évaluation du QD liée à un scénario d'exposition par ingestion, la migration des polluants dans la chaîne alimentaire conduit à des concentrations dans les denrées qui ne sont pas à l'équilibre. Du fait du processus de dépôt, des cycles culturels, des calendriers agricoles et du transfert entre les différentes matrices, les concentrations d'uranium dans les denrées sont susceptibles de varier de plusieurs ordres de grandeur durant les mois qui suivent l'accident et ne peuvent donc pas raisonnablement être considérées comme constantes. Ces variations ont pour conséquence directe une variation importante des DJE dans le temps.

Évaluer des indices de risques annuels, sur le modèle du calcul de dose ingestion réalisé pour l'impact radiologique (doses reçues respectivement durant la 1^{ère} et la 2^{ème} année), ne semble pas transposable pour l'impact chimique par voie d'ingestion d'uranium. L'évaluation pourrait devoir suivre une approche spécifique tenant compte de l'évolution temporelle de la quantité d'uranium susceptible d'être ingérée.

Les variations de concentration qui dépendent en particulier de la forme physicochimique de l'uranium, du type de denrées potentiellement contaminées, de la date de l'accident, vont nécessiter de décliner l'évaluation à chaque cas d'étude considéré.

L'évaluation chimiotoxique montre que l'exposition par ingestion est la voie d'exposition prépondérante durant les mois suivant le rejet, et ce jusqu'à la fin des dernières récoltes des cultures qui ont été exposées au panache. L'exposition par ingestion de sol par inadvertance conduirait elle aussi à des résultats dépassant les valeurs repères pour les enfants. L'analyse des résultats de l'évaluation réalisée montre que les niveaux d'exposition au cours des deux premières années de la phase post-accidentelle seraient nettement supérieurs à la valeur de 1 pour les QD.

5.3.3.3. Mise en regard de l'impact radiologique et de l'impact chimique

S'il n'est pas à proprement parler possible de comparer les résultats de l'évaluation d'impact chimique et radiologique, l'étude réalisée montre que pour un rejet de 100 kg d'uranium, les niveaux de dose radiologiques évalués ne conduiraient pas à la mise en place d'action de protection de la population là où les QD caractérisant l'impact chimique seraient en revanche largement supérieurs à 1, notamment dans les premiers temps après la formation des dépôts, et conduirait donc à devoir envisager des mesures pour limiter les risques. **Quel que soit le mélange isotopique d'uranium considéré ici, et compte-tenu des paramètres retenus pour cette étude, il apparaît donc que c'est l'aspect chimiotoxique qui dimensionnerait le territoire sur lequel envisager des mesures de protection post-accidentelles.**

Il convient néanmoins de rester prudent dans l'interprétation des résultats d'évaluations d'impact radiologique comme chimiotoxique sur ces cas d'étude, celles-ci étant dépendantes du choix de paramètres, certains restant discutables et pouvant contribuer à surestimer ou sous-estimer les voies d'expositions.

La comparaison des activités calculées dans les denrées destinées à la consommation avec les valeurs de NMA montre que les activités dans les denrées alimentaires ne dépassent pas, ou très peu, les NMA, alors que l'indice de risque chimique par ingestion dépasse de plusieurs ordres de grandeur le seuil de 1.

6. PERTINENCE DES RECOMMANDATIONS ACTUELLES DU CODIRPA

En 2019, le CODIRPA a recommandé [2] de faire évoluer des éléments de la doctrine post-accidentelle publiés précédemment [1] en portant plus spécifiquement sur le cas d'un rejet accidentel de réacteur. Dans le cadre des travaux entamés par le GT du CODIRPA chargé d'examiner les situations de rejets accidentels pouvant survenir sur des installations autres que des CNPE, il a été demandé à l'IRSN d'apprécier la pertinence de ces recommandations pour des situations de rejet accidentel d'uranium et de mettre en évidence les points de la doctrine actuelle qui nécessitent une réflexion du GT.

L'IRSN estime que les grands principes de gestion post-accidentelle présentés dans les nouvelles recommandations du CODIRPA restent globalement valables et applicables dans le cas d'un rejet d'uranium mais **qu'il existe un besoin de complément du fait d'un certain nombre de particularités de cette substance, notamment du fait de sa chimiotoxicité, et un besoin de confirmation de l'analyse présentée dans ce document de la part des experts du risque chimique.**

Les spécificités de l'uranium conduisent à des difficultés de mise en œuvre de certaines des recommandations, liées d'une part à la réalisation des mesures permettant de quantifier les contaminations de l'environnement ou de l'Homme, et d'autre part à la définition d'indicateurs pour la mise en place du zonage post-accidentel. Sur ce dernier point il est en particulier indispensable pour le cas d'une contamination de l'environnement faisant suite à un rejet d'uranium, de prendre en considération l'impact chimiotoxique de l'uranium au-delà du seul impact radiologique.

Ci-dessous les points relevés dans les recommandations 2019 du CODIRPA [2] qui appellent un commentaire de l'IRSN au regard de la spécificité d'une contamination par de l'uranium.

Zones post-accidentelles définies sur des indicateurs de l'exposition des personnes

Que l'évaluation de l'impact soit liée à l'aspect radiotoxique ou chimiotoxique, il convient d'une manière générale de considérer toutes les voies d'expositions auxquelles peut être exposée la population, à savoir l'ingestion de denrées contaminées, l'ingestion involontaire de sol et de poussière, l'inhalation de particules remises en suspension, et, pour l'aspect radiologique, l'irradiation externe par les dépôts. L'estimation repose sur des modalités de calcul faisant appel à différents paramètres entachés d'importantes incertitudes (régimes alimentaires et facteur de remise en suspension en particulier). En conséquence, les estimations d'impact, radiologique comme chimique, se heurtent à certaines limites.

Concernant la zone d'éloignement, les recommandations 2019 du CODIRPA [2] stipulent que le critère de délimitation du périmètre d'éloignement se base uniquement sur l'exposition externe due aux dépôts. Dans le cas d'un rejet d'uranium, même avec la présence de descendant émetteurs γ , la dose susceptible d'être reçue par voie externe est minoritaire par rapport à celle résultant d'autres voies d'exposition comme l'inhalation des particules remises en suspension ou l'ingestion involontaire de sol et de poussières. **Aussi l'IRSN estime que l'inhalation des particules remises en suspension et l'ingestion involontaire de sol et de poussières doivent être considérées dans l'estimation des indicateurs pour la définition de la zone d'éloignement, que l'évaluation porte sur le risque chimiotoxique ou radiotoxique.**

Évaluations au regard de la radiotoxicité de l'uranium

Les évaluations dosimétriques à réaliser ne soulèvent pas de difficulté majeure, exception faite de la sensibilité du choix des paramètres de calcul tels le facteur de remise en suspension, le régime alimentaire et le niveau d'autarcie.

En cas d'incorporation d'uranium, certains organes sont plus particulièrement exposés (poumons, rein, os) toutefois à ce stade l'IRSN n'identifie pas de situation d'exposition post-accidentelle du public à de l'uranium pour

laquelle la connaissance de la dose efficace ne serait pas suffisante pour gérer la situation et où il serait nécessaire d'évaluer les doses équivalentes à des organes spécifiques (et d'introduire des critères associés). La dose efficace restant un indicateur approprié pour l'optimisation et la comparaison aux niveaux de référence. En conséquence l'utilisation d'une dose efficace (corps entier) pour définir un zonage sous l'angle du risque radiologique est jugée suffisante.

Évaluations au regard de la chimiotoxicité de l'uranium

L'évaluation de l'impact chimique d'une substance telle que l'uranium fait appel à des méthodes qui ne sont pas habituellement utilisées en phase post-accidentelle par l'IRSN. Dans le cadre de la réalisation du présent rapport en l'absence d'un cadre règlementaire méthodologique spécialement dédié aux évaluations du risque chimique en situation post-accidentelle, la méthode ERS décrite dans le guide publié par l'INERIS [42] a été appliquée au regard de l'ensemble des documents cités en référence au paragraphe 5.3.2.

L'application de cette méthode, telle qu'elle a été déclinée, conduit à certains questionnements qui appellent à tenir des échanges avec l'INERIS dans le cadre du GT.

Une problématique provient du fait que les indices de risque font appel à des indicateurs et VTR représentatifs de la période d'exposition considérée (concentration d'exposition par inhalation en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, concentration d'exposition par ingestion en $\mu\text{g}\cdot\text{kg}_{\text{individu}}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$), et non pas intégrées sur une période d'exposition durable.

Concernant la voie ingestion, la méthode propose d'évaluer une dose journalière d'exposition (DJE) moyenne sur une période. Or à l'issue de la formation des dépôts, les niveaux de contamination dans les denrées alimentaires varient de manière significative, ce qui conduit à une variation tout aussi importante de la DJE. Évaluer des indices de risques intégrés et annuels, sur le modèle du calcul de dose ingestion réalisé pour l'impact radiologique (doses reçues respectivement sur une exposition la 1^{ère} et la 2^{ème} année) pose question. L'évaluation pourrait en effet devoir suivre une approche spécifique tenant compte de l'évolution temporelle de la quantité d'uranium susceptible d'être ingérée.

Concernant la voie inhalation, les VTR recommandées par l'INERIS sont différentes selon une exposition subchronique ou chronique. Il importe donc de déterminer dans quelle mesure une exposition post-accidentelle relève d'une exposition chronique ou subchronique. La réponse à ce questionnement impacterait la distance sur laquelle envisager une action de protection, mais ne remettrait pas en cause la prédominance de la voie ingestion alimentaire sur les autres voies qui a été constatée sur le cas d'étude présenté ci-avant.

Une zone sur laquelle envisager la mise en place de mesures particulières est à proposer sur la base d'une comparaison entre une dose estimée suivant l'ensemble des voies d'exposition pertinentes et une valeur repère appropriée. Concernant les évaluations chimiotoxiques, l'IRSN s'interroge sur l'additivité des quotients de danger (QD) dus à l'inhalation des particules remises en suspension d'une part et à l'ingestion d'autre part, d'autant que les indicateurs respectifs pourraient être calculés sur des périodes d'exposition différentes. L'additivité avérée ou non ne devrait pas conduire à envisager des mesures de protection différentes, mais aurait un impact sur la distance sur laquelle la décision porterait.

Dans son guide ERS de 2021 [42], l'INERIS précise à propos de la prise en compte des bruits de fond que, sans les additionner, il reste intéressant de comparer les concentrations résultant de l'installation à celles préexistant dans les milieux environnants. Cette comparaison permet de mettre en perspective le risque attribuable à l'installation par rapport à celui lié à d'autres sources d'exposition. L'OMS indique que du fait de l'alimentation la population mondiale ingère entre 1 et 4 μg d'uranium par jour [35] Pour mémoire, pour un adulte de 70 kg, un QD de 1 est atteint pour une ingestion du fait de la situation accidentelle de 14 μg d'uranium en moyenne par jour.

Comparaison des approches

L'étude de cas réalisée indique que l'évaluation de l'impact radiologique et le dimensionnement des zones suivant les recommandations du CODIRPA ne permettent pas, au regard de la démarche d'évaluation de l'impact chimique

telle qu'elle a été comprise, de garantir la suffisance de la protection des personnes face aux risques d'apparition d'effets résultants de la chimiotoxicité de l'uranium. Néanmoins elle montre que mettre les évaluations du risque chimiotoxique et du risque radiotoxique liés à l'exposition post-accidentelle sur un même plan pour proposer des actions de protection n'est pas évident.

D'une part car les valeurs-repères pour le risque chimiotoxique sont a priori proches de l'occurrence du risque. En effet, « si les indicateurs dépassent ces valeurs repères, cela signifie que l'évaluation ne peut pas démontrer l'absence de risque préoccupant attribuable aux émissions de l'installation » [42]. Ainsi si le QD est supérieur à 1 les risques sont « jugés préoccupants du point de vue de la santé des populations exposées » [42]. Les valeurs-repères retenues dans les recommandations du CODIRPA au regard du risque radiologique restent en deçà de 100 mSv (niveau de référence pris dans la gamme 1-20 mSv). L'homogénéité ou non entre ces approches mériterait d'être éclaircie.

D'autre part, l'approche considérée dans la recommandation du CODIRPA en cohérence avec le code de la santé publique, nécessite d'évaluer des doses sur des périodes annuelles mais l'évaluation de l'impact chimique pour des substances à seuil nécessite, elle, d'estimer des indices de risque sur la base d'une quantité d'uranium moyenne ingérée sur une plage de temps ou d'un niveau de contamination atmosphérique moyen sur une plage de temps, cette plage de temps n'étant pas clairement établie.

Zone de contrôle avant commercialisation

Concernant la zone de contrôle avant commercialisation, le CODIRPA recommande d'interdire la mise sur le marché des denrées dont le niveau d'activité serait supérieur aux niveaux maximaux admissibles définis par le règlement Euratom 2016/52 [18]. Ce point concerne donc les aspects radiologiques de l'uranium et restent applicables. Toutefois, l'analyse de la méthode de calcul des NMA du règlement Euratom 2016/52 appliquée à l'uranium, montre qu'un questionnement existe sur la pertinence de le classer dans la famille des radionucléides à période supérieure à 10 jours. Une valeur de 1250 Bq.kg⁻¹ d'uranium naturel dans un aliment correspond à environ 100 mg(U).kg⁻¹. Une consommation quotidienne de 100 g d'aliment contaminé à ce niveau conduirait à un QD très largement supérieur à 1.

Sur les aspects chimiques, seul des seuils pour l'eau de boisson existent. Pour les denrées, l'IRSN n'a pas identifié à ce stade de référentiel tant au niveau international (FAO, ...) qu'au niveau national.

Consolidation du zonage par les mesures dans l'environnement

L'émission de photons par décroissance de l'uranium, et l'existence par ailleurs de descendants émetteurs beta-gamma, permettra d'envisager, dans les territoires où les dépôts sont relativement importants, de réaliser une cartographie par des moyens de mesure embarqués (aéronef, véhicule) notamment en cas de rejet d'uranium enrichi ou issu du retraitement. Toutefois, ces mesures ne seront pas forcément suffisantes pour identifier les niveaux en correspondance avec la délimitation du zonage. Des mesures de contamination directe des émissions α , possible sur les surfaces sèches, seront à prévoir. En cas de temps humide, la caractérisation de la contamination des territoires demandera sensiblement plus de temps et nécessitera une stratégie de mesure distincte.

L'existence d'un bruit de fond en uranium sur le territoire français nécessitera une analyse isotopique pour caractériser la signature du rejet au regard du spectre de l'uranium naturel. Ce point sera d'autant plus difficile si le rejet accidentel est un rejet d'uranium naturel.

Pour la zone de contrôle avant commercialisation, comme indiqué au paragraphe 4.4 et en Annexe 5, les mesures de contamination en uranium dans les productions agricoles devront être réalisées en laboratoire fixe. Ces mesures nécessiteront un temps de réalisation plus long que pour les contaminations comportant de nombreux émetteurs gamma. Pour le contrôle des productions agricoles, ces limitations nécessiteront de cibler et prioriser les échantillons à prélever et à analyser. Toutefois, l'utilisation de l'ICP-MS ou de la spectrométrie α sans

préparation radiochimique de l'échantillon permet de réaliser un plus grand nombre de mesure en un temps plus court que dans le cas d'une contamination au plutonium.

Malgré les difficultés de mesures moins restrictives que pour une contamination par des émetteurs α purs, les délais d'établissement du zonage post accidentel seront nécessairement plus longs que pour un rejet de radionucléides majoritairement émetteurs gamma.

Si le mélange isotopique le permettait, le choix d'un traceur facilitant la quantification, par la mesure, de la contamination en uranium, pourrait se heurter au fait qu'il puisse se comporter différemment de l'uranium (mobilité) et puisse donc rendre difficile le maintien d'une correspondance constante et homogène entre ce traceur et l'uranium.

Contrôle des populations

La mesure des excréta est la mesure de référence à la suite d'une contamination interne par des isotopes d'uranium. L'uranium pourra être identifié et quantifié dans les selles et les urines via la mesure par ICP-MS ou par spectrométrie α . Ces différentes méthodes de mesures permettront de détecter des quantités d'uranium très faibles dans les excréta. Néanmoins, l'uranium étant naturellement présent dans l'environnement et dans l'alimentation, il est retrouvé naturellement dans les urines et les selles de tous les individus. Il est utile de disposer de valeurs de référence pour les taux de base des excrétions d'uranium liés aux apports alimentaires hors accident.

Du fait de l'émission de photons par l'uranium 235 ou de la présence de thorium 234 descendant de l'uranium 238, des mesures via anthroporadiométrie pourront être envisagées, mais la quantification de la contamination de l'organisme ne sera possible par cette voie que pour des contaminations relativement importantes.

Mise à disposition des populations de dispositifs de mesure radiologique des denrées alimentaires

Malgré la présence de photons ou de descendants émetteurs γ , l'autocontrôle des denrées par la population ne s'envisagerait que difficilement en cas de rejet d'uranium. Les mesures de contamination des denrées nécessiteraient des opérations de préparation et la mise en œuvre de moyens peu accessibles au public.

7. SYNTHÈSE

De nouvelles recommandations pour la gestion de la phase post-accidentelle ont été émises en 2019 [2] et reprises en 2022 [3] par le CODIRPA. Ces recommandations ont été établies en premier lieu pour des accidents sur des CNPE, aussi l'IRSN a ensuite été sollicité pour produire des éléments de connaissance sur les spécificités d'une contamination accidentelle par des radionucléides émetteurs α à partir de l'exemple du plutonium et pour apprécier la robustesse des nouvelles recommandations au regard de tels rejets. Le présent rapport a été produit en réponse à une demande similaire de l'ASN mais portant cette fois sur le cas de rejets d'uranium. Au-delà de la production d'informations techniques, cette nouvelle étude a permis d'identifier des points méritant d'être étudiés par le groupe de travail mis en place au sein du CODIRPA.

Il a été fait état d'éléments de connaissance sur la présence et le comportement de l'uranium dans l'environnement et dans l'organisme, sur la métrologie des isotopes de l'uranium émetteurs α et de ses descendants émetteurs γ dans l'environnement et dans l'organisme, ainsi que sur les voies d'exposition contribuant à la dose. Enfin la robustesse des recommandations du CODIRPA dans le cas de rejets accidentels d'uranium est discutée.

Au cours du cycle de vie du combustible, l'uranium est manipulé sous différentes formes physiques et physico-chimiques, aussi bien au sein des installations que lors de son transport. Selon les étapes du cycle les rejets, les principaux risques de rejets notables d'uranium sont associés à des fuites d' UF_6 , de nitrate d'uranyle ($UO_2(NO_3)_2$), à la dispersion de poudre d' UO_2 , d' U_3O_8 , ou d' UF_4 . Le mélange isotopique de l'uranium susceptible d'être rejeté accidentellement dans l'environnement diffère selon que l'uranium est naturel, appauvri ou issu du retraitement, enrichi en ^{235}U et à quel taux, et dépend de son vieillissement.

L'uranium est un élément présent naturellement dans l'environnement, avec des activités moyennes dans le sol français métropolitain variant de manière importante selon les formations géologiques. Son comportement dans les compartiments environnementaux dépend de sa forme chimique et des conditions physico-chimiques du milieu. En milieu oxydant, l'uranium se trouve principalement sous sa valence (VI), il sera alors soluble et mobile alors qu'en milieux réducteurs il est présent sous des formes insolubles et peu mobiles (valence IV). L'uranium est également présent naturellement dans l'eau de boisson et dans les produits végétaux ou animaux de la chaîne alimentaire.

La remise en suspension de l'uranium est bien moins étudiée que celle du césium, une approche conservative, consistera à appliquer les mêmes coefficients pour l'uranium que pour le césium alors que le césium est moins mobile donc restant a priori davantage disponible en surface.

Au niveau international, des textes encadrent la mise sur le marché des denrées alimentaires à la suite d'un accident nucléaire (réglementation Euratom 2016/52, Codex Alimentarius FAO). Toutefois ces textes ne prennent pas en compte l'impact chimique de l'uranium. Les textes relatifs à la protection vis-à-vis du risque chimique concernent uniquement l'eau de boisson, et en situation de routine.

La mesure de l'uranium pourra être facilitée par la présence de descendants émetteurs γ . Une cartographie par les moyens de mesure embarqués pourrait être envisagée, notamment en cas de rejet d'uranium enrichi ou de retraitement, pour des territoires où les dépôts s'élèvent au-dessus de la limite de détection. Ces mesures directes des émissions γ ne seront pas forcément suffisantes pour identifier les niveaux recherchés, aussi des mesures de contamination directes des émissions α , seront, par temps sec, à envisager. Pour la caractérisation de la contamination des matrices environnementales (sols, végétaux ...), les prélèvements doivent être traités dans les laboratoires fixes. Au-delà du transport des échantillons la restitution des résultats de mesure dépendra de la méthode de mesure employée. Même si plus contrainte que la mesure par spectrométrie γ , la mesure de l'uranium par ICP-MS et par spectrométrie α sans radiochimie préalable permettra l'analyse d'un plus grand nombre d'échantillons. Malgré les difficultés de mesures moins restrictives que pour une contamination par des émetteurs α purs, les délais d'établissement du zonage post accidentel seront nécessairement plus long que pour un rejet de radionucléides majoritairement émetteurs γ .

L'uranium est un métal lourd qui présente pour l'organisme à la fois une toxicité radiologique et une toxicité chimique. La radiotoxicité de l'uranium dépend de sa composition isotopique. En effet l'enrichissement de l'uranium a un impact significatif sur les doses estimées : plus l'uranium est enrichi, plus les doses efficaces calculées sont importantes.

Après incorporation dans l'organisme, l'uranium inhalé sous forme peu soluble demeura au niveau des voies respiratoires, contrairement à l'uranium sous une forme soluble qui se transférera rapidement dans le sang. L'uranium transféré dans le sang via la paroi intestinale ou les poumons qui n'est pas excrété se fixera principalement au niveau des reins ou du squelette. Du fait de la rétention des composés insolubles dans les poumons, il est admis que les effets pulmonaires sont principalement dus à la radiotoxicité de l'uranium alors que les effets rénaux de l'uranium sont attribués à sa chimiotoxicité.

Les analyses de laboratoire (radiotoxicologie) réalisées sur des excréta sont les plus pertinentes à la suite de contamination où l'uranium est majoritaire. Comme pour l'analyse des matrices environnementales, ces mesures radiotoxicologiques sont soumises à des contraintes en termes de délai de réalisation des analyses et de nombre d'échantillons pouvant être traités en parallèle. Ces difficultés nécessiteront de réfléchir à l'organisation de la prise en charge et du suivi sanitaire des populations exposées.

La double propriété radiotoxique et chimiotoxique de l'uranium impose d'évaluer les risques liés à ces deux aspects. Toutefois le cadre réglementaire et méthodologique associé aux évaluations du risque chimique n'a pas vocation à couvrir l'évaluation du risque en situation post-accidentelle. Néanmoins, pour un cas d'étude, l'évaluation du risque chimique selon la méthode ERS a été adjointe à l'évaluation d'indicateurs radiologiques suivant l'approche classiquement menée par l'IRSN. Il apparaît, via l'étude de cas réalisée et relatée dans ce document, que l'évaluation de l'impact radiologique et le dimensionnement des zones suivant les recommandations du CODIRPA ne permettent pas, au regard de la démarche d'évaluation de l'impact chimique telle qu'elle a été comprise, de garantir la suffisance de la protection des personnes face à la possible survenue d'effets résultants de la chimiotoxicité de l'uranium.

Concernant la prise en compte de la seule dose externe pour la définition d'un périmètre d'éloignement, l'IRSN estime que, comme retenu dans la doctrine CODIRPA de 2012, d'autres voies d'exposition comme l'inhalation de particules remises en suspension et l'ingestion involontaire de sol et de poussières doivent être considérées, quel que soit le type de rejets et a fortiori dans le cas de rejets d'uranium pour lesquels ces voies d'exposition, secondaires dans le cas de rejets de radioéléments émetteurs γ , présentent une contribution prépondérante à la dose totale hors ingestion.

Sur la base des différents éléments étudiés dans ce rapport, il apparaît que les principes de gestion post-accidentelle présentés dans les nouvelles recommandations du CODIRPA restent globalement applicables dans le cas d'un rejet d'uranium. Du fait d'un certain nombre de particularités de cette substance liées à sa chimiotoxicité, l'IRSN estime que des travaux complémentaires dans le cadre du CODIRPA sont nécessaires avec les experts du risque chimique pour décliner ces principes suivant des modalités d'évaluation des zonage adaptées au risque chimiotoxique.

Que l'évaluation du risque soit réalisée sous l'angle de la chimiotoxicité ou de la radiotoxicité de l'uranium, les évaluations nécessitent l'utilisation de méthodes calculatoires dont les paramètres restent entachés d'incertitudes. D'un point de vue général, il apparaît que l'exposition par ingestion de denrées alimentaires contaminées est la voie prédominante la première année. Les années suivantes l'ingestion involontaire de sol et de poussières serait la voie d'exposition principale.

GLOSSAIRE

AIEA	Agence Internationale à l'Énergie Atomique
ASN	Autorité de Sûreté Nucléaire
CODIRPA	Comité DIRECTEUR pour la gestion de la phase Post-Accidentelle
CNPE	Centre Nucléaire de Production d'Électricité
CTC	Centre Technique de Crise
DJE	Dose Journalière d'Exposition
ERS	Évaluation des Risques Sanitaires chimiques
ERI	Excès de Risque Individuel
FAO	Food And Agriculture Organisation
HPGe	Germanium hyper-pur
IEM	Interprétation de l'État des Milieux (IEM)
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
GT	Groupe de Travail
LMA	Laboratoires Mobiles Anthroporadiométriques
MES	Matières En Suspension
NaI	Iodure de sodium
OMS	Organisation Mondiale de la Santé
QD	Quotient de Danger
REP	Réacteur à Eau sous Pression
TRS	Technical Reports Series
UF ₆	Hexafluorure d'Uranium
UNE	Uranium Naturel Enrichi
UR	Uranium de Retraitement
VTR	Valeur Toxicologique de Référence
WHO	World Health Organisation

RÉFÉRENCES

- [1] ASN, 2012. Éléments de doctrine pour la Gestion Post-Accidentelle d'un Accident Nucléaire.
- [2] ASN, 2019. Recommandations du CODIRPA relatives à la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire. CODEP-ASN-DEU-2019-043679.
- [3] ASN, 2022. Recommandations pour la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire. CODIRPA.
- [4] IRSN, 2021. Pertinence de la doctrine post accidentelle pour des accidents autres que ceux pouvant survenir sur un CNPE – Cas de rejets d'émetteurs alpha, à partir de l'exemple du plutonium. Rapport IRSN N°2021-00248.
- [5] H. Metivier, 2001. L'Uranium de l'environnement à l'Homme.
- [6] IRSN, Dossier internet L'exploitation du minerai d'uranium en France métropolitaine : impact environnemental et risque pour la population Les sites miniers d'uranium (irsn.fr)
- [7] IRSN, fiche radionucléide environnement, Uranium naturel et environnement. https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/environnement/Documents/Uranium_VF.pdf
- [8] Depleted Uranium in Kosovo - A Post-Conflict Assessment ISBN No: 92-807- 2146-1 – UNEP.
- [9] D. Delacroix, J.P. Guerre, P. Leblanc, 2022. Guide pratique radionucléides & radioprotection - 3ème édition. EDP Sciences EAN13 : 9782759826377
- [10] Ansoborlo, E., Henge Napoli, M.H., Roy, M., Pihet, P. and Rannou, A., 1995. Implementation of the new ICRP respiratory tract model: Example of a potential exposure to an industrial oxide UO₂. Bul. of Radiat. Protection 18(1 & 2): 1-7.
- [11] <http://www.wise-uranium.org/rccu.html>
- [12] IAEA, 2007. Management of Reprocessed Uranium Current Status and Future Prospects. IAEA-TECDOC-1529.
- [13] G. Ielsch, M. Cuney, F. Buscaïl, F. Rossi, A. Leon, M.E. Cushing, 2017. Estimation and mapping of uranium content of geological units in France. Journal of Environmental Radioactivity, 166, 210-219.
- [14] OMS, 2017. Directives de qualité pour l'eau de boisson, quatrième édition <http://apps.who.int/iris/bitstream/handle/10665/258887/9789242549959-fre.pdf;jsessionid=A9BDAB7A7D00AD7CD23DF9CEB308B83B?sequence=1>
- [15] Directive 2013/51/EURATOM du conseil du 22 octobre 2013 fixant des exigences pour la protection de la santé de la population en ce qui concerne les substances radioactives dans les eaux destinées à la consommation humaine.
- [16] Arrêté du 12 mai 2004 fixant les modalités de contrôle de la qualité radiologique des eaux destinées à la consommation humaine modifié par l'arrêté du 9 décembre 2015.
- [17] FAO, OMS, 2019. Codex Alimentarius. Norme générale pour les contaminants et les toxines présents dans les produits de consommation humaine et animale. CXS 193-1995.
- [18] Règlement (Euratom) 2016/52 du conseil du 15 janvier 2016 fixant les niveaux maximaux admissibles de contamination radioactive pour les denrées alimentaires et les aliments pour animaux après un accident nucléaire ou dans toute autre situation d'urgence radiologique, et abrogeant le règlement (Euratom) no 3954/87 et les règlements (Euratom) no 944/89 et (Euratom) no 770/90 de la Commission.
- [19] A. Kaul, 1989. ALARA and Countermeasures: The approach proposed by the Article 31 group of experts, Radiation Protection Optimization – 'Advances in practical implementation' – Proceedings of the third

European scientific seminar held in Madrid 12 to 14 September 1988, Radiation Protection 44, Commission of the European Communities, p.431-451.

- [20] J. Sinnaeve, G. Gerber, 1991. Underlying data for derived emergency reference levels – Post-Chernobyl action, Radiation Protection, Commission of the European Communities, p.1-388.
- [21] IAEA, 2010. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. TRS472.
- [22] IAEA, 2004. Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. TRS422.
- [23] Directive interministérielle du 29 novembre 2005 relative à la réalisation et au traitement des mesures de radioactivité dans l'environnement en cas d'événement entraînant une situation d'urgence radiologique.
- [24] Frelon S, Houpert P, Lepetit D, Paquet F, 2005. The chemical speciation of uranium in water does not influence its absorption from the gastrointestinal tract of rats. *Chemical research in toxicology* 18(7):1150-4. doi:10.1021/tx049662i.
- [25] Konietzka R, 2015. Gastrointestinal absorption of uranium compounds--a review. *Regulatory toxicology and pharmacology: RTP* 71(1):125-33. doi:10.1016/j.yrtph.2014.08.012.
- [26] ICRP, 2019. Occupational intakes of radionuclides: Part 4. ICRP Publication 141. *Ann. ICRP* 48(2/3).
- [27] La Touche YD, Willis DL, Dawydiak OI (1987) Absorption and biokinetics of U in rats following an oral administration of uranyl nitrate solution. *Health physics* 53(2):147-62.
- [28] Leggett RW, Pellmar TC, 2003. The biokinetics of uranium migrating from embedded DU fragments. *Journal of environmental radioactivity* 64(2-3):205-25. doi:S0265-931X(02)00050-4 [pii].
- [29] Paquet F, Houpert P, Blanchardon E, Delissen O, Maubert C, Dhieux B, Moreels AM, Frelon S, Gourmelon P, 2006 Accumulation and distribution of uranium in rats after chronic exposure by ingestion. *Health physics* 90(2):139-47. doi:00004032-200602000-00004 [pii].
- [30] Ubios AM, Guglielmotti MB, Steimetz T, Cabrini RL, 1991. Uranium inhibits bone formation in physiologic alveolar bone modeling and remodeling. *Environmental research* 54(1):17-23.
- [31] UNSCEAR, 2016. Sources, effects and risks of Ionizing Radiation. Annex D. Biological effects of selected internal emitters - uranium., United Nations, New York.
- [32] Golden AP, Ellis ED, Cohen SS, Mumma MT, Leggett RW, Wallace PW, Girardi D, Watkins JP, Shore RE, Boice JD, 2019. Updated mortality analysis of the Mallinckrodt uranium processing workers, 1942-2012. *International journal of radiation biology*:1-21. doi:10.1080/09553002.2019.1569773
- [33] https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Formation_recherche/Theses/th%C3%A8ses%202022/Pages/SAN22-6-Etude-effets-potentiellement-cancerigenes-uranium-niveau-renal-aide-modeles-murins.aspx#.Y49VmMuZObg
- [34] Santé publique France, 2021. Imprégnation de la population française par les métaux et métalloïdes. Programme national de biosurveillance. Esteban 2014-2016. Synthèse.
- [35] OMS, 2008. Uranium in Drinking-water. WHO/SDE/WSH/03.04/118.
- [36] IAEA, 2020. Medical management of radiation injuries. International Atomic Energy Agency, Safety Reports Series no. 101, 2020.
- [37] ASN, 2021. Guide national d'intervention médicale en cas d'événement nucléaire ou radiologique. 03/09/2021, ASN.
- [38] NRPA, 2009. Triage, monitoring and treatment of people exposed to ionizing radiation following a malovelent act, Norwegian Radiation Protection Authority.

- [39] ICRP, 1995. Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients. ICRP Publication 72. Ann. ICRP 26 (1).
- [40] ICRP, 1995. Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 4 Inhalation Dose Coefficients, ICRP Publication 71.
- [41] Arrêté du 1er septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants
- [42] INERIS, 2021. Évaluation de l'état des milieux et des risques sanitaires, démarche intégrée pour la gestion des émissions de substances chimiques par les installations classées, deuxième édition, INERIS, 200357-2563482-v1.0.
- [43] Circulaire du 9 AOUT 2013 relative à la démarche de prévention et de gestion des risques sanitaires des installations classées soumises à autorisation.
- [44] Circulaire du 20 février 2012 relative à la gestion des impacts environnementaux et sanitaires d'événements d'origine technologique en situation post-accidentelle.
- [45] Ministère de la Transition écologique et de la Cohésion des territoires, 2012. Guide de gestion de l'impact environnemental et sanitaire en situation post-accidentelle, cas des accidents d'origine technologique. Méthode générale.
- [46] IRSN, 2019. Guide méthodologique pour l'évaluation du risque écologique et sanitaire lié aux rejets de substances chimiques par les INB via les effluents produits en fonctionnement normal Rapport IRSN/20 19-00367
- [47] Portail INERIS <https://substances.ineris.fr/fr/>
- [48] INERIS, 2022. Bilan des choix de VTR disponibles sur le portail des substances chimiques de l'INERIS, Document INERIS 204119 – 2730827 v1.0.
- [49] INERIS, 2018. Uranium et ses composés, INERIS, DRC-18-163632-00981A, version 1.
- [50] INERIS, 2010. Jeux d'équations pour la modélisation des expositions liées à la contamination d'un sol ou aux émissions d'une installation industrielle. Rapport d'étude N°DRC-08—94882-16675C, 01/08/2010.

ANNEXES

Annexe 1. Saisine ASN	47
Annexe 2. Le cycle du combustible	49
2.1. Installations mettant en œuvre de l'Uranium	50
2.1.1. Site de Malvésy	50
2.1.2. Site de Pierrelatte (Tricastin).....	50
2.1.2.1. Usine Philippe Coste : conversion de l'UF ₄ en UF ₆	50
2.1.2.2. SOCATRI	50
2.1.2.3. Usine Georges-Besse II (GB2) : enrichissement.....	50
2.1.2.4. Usine W : conversion uranium appauvri	51
2.1.2.5. Atelier TU5 : conversion uranium de retraitement	51
2.1.2.6. Entrepôts	51
2.1.3. Bessines	51
2.1.4. Site de Romans sur Isère	51
2.1.4.1. FBFC : INB n°98	51
2.1.4.2. CERCA : INB n°63.....	52
2.1.5. Site de Lingen.....	52
2.1.6. Site de La Hague.....	52
2.2. Typologies accidentelles pouvant conduire à un rejet notable d'uranium	52
2.3. Accidents passés mettant en œuvre de l'uranium	52
2.3.1. COMURHEX : Accident du 1er juillet 1977	52
2.3.2. SOCATRI : Accident du 7 juillet 2008 :	53
Annexe 3. Niveaux d'activité dans l'environnement	54
3.1. Bruit de fond dans l'environnement français métropolitain	54
3.1.1. Sol	54
3.1.2. Autres compartiments	55
3.2. Niveaux d'activité autour de sites industriels.....	57
3.2.1. Sites miniers.....	57
3.2.2. Installations du cycle de l'uranium : conversion – enrichissement – fabrication	58
3.2.3. CNPE	60
3.2.4. Autres sites industriels.....	60
3.2.4.1. Phosphogypse.....	60
3.2.4.2. Mange-Garri.....	60
3.3. Résumé.....	61
3.4. Références.....	70
Annexe 4. Comportement de l'Uranium dans les matrices environnementales	72
4.1. Transferts dans le milieu terrestre	72
4.1.1. Teneurs en uranium dans les sols	72
4.1.2. Mobilité dans le sol	72
4.1.2.1. Valeurs de Kd pour l'uranium.....	74
4.1.3. Transferts aux végétaux.....	74
4.1.3.1. Voies de transfert.....	74
a. Transfert par voie foliaire	75
b. Transfert par voie racinaire	76
4.1.4. Transferts aux animaux (animaux d'élevage).....	78
4.2. Teneurs et transferts dans le milieu aquatique continental	78
4.2.1. Eaux	78
4.2.2. Sédiments	79
4.2.3. Végétaux	80
4.2.4. Animaux	80
4.3. Transferts dans le milieu aquatique marin.....	83
4.3.1. Eaux marines.....	83
4.3.2. Eaux estuariennes	83

4.3.3. Sédiments	83
4.3.4. Organismes	83
4.3.5. Végétaux	84
4.3.6. Animaux	84
4.4. Références bibliographiques	85

Annexe 5. Moyens et capacités de mesures de l'uranium pour les matrices environnementales et les aliments 93

5.1. Sur le terrain	93
5.1.1. Techniques de mesures de l'uranium sur le terrain	93
5.1.1.1. Mesure de l'uranium par spectrométrie γ	93
5.1.1.2. Mesure des émetteurs α par spectrométrie α	93
5.1.1.3. Mesure des émetteurs α par scintillation liquide	93
5.1.2. Seuil de décision/limite de détection des mesures des émetteurs α sur le terrain	96
5.1.3. Autres techniques de mesure de terrain	98
5.2. En laboratoire	99
5.2.1. Isotopes de l'uranium	99
5.2.2. Isotopes du Plutonium et Américium	101
5.3. Les laboratoires hors IRSN	103
5.3.1. Le Réseau National de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (RNM)	104
5.3.2. Les laboratoires DGAL	104
5.3.3. Les laboratoires DGCCRF	106
5.3.4. Les laboratoires DGS	106
5.3.5. Synthèse sur les laboratoires hors IRSN	106
5.4. Laboratoires Potentiellement mobilisables	107
5.4.1. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'uranium	107
5.4.2. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure du plutonium et de l'américium par détection du rayonnement alpha	108
5.4.3. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'américium par détection du rayonnement gamma	108
5.4.4. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'activité « alpha globale » d'un échantillon	109
5.5. Lexique	109
5.6. Références bibliographiques	109

Annexe 6. Fiches "Métrologie Crise" de l'IRSN 112

Annexe 7. Stratégie de mesure dans l'environnement 120

7.1. Identification de la zone contaminée par temps sec en cas de rejet d'uranium	120
7.2. Identification de la zone contaminée par temps humide en cas de rejet d'uranium	121
7.3. Mesure de végétaux	121

Annexe 8. Comportement dans l'organisme et toxicité chez l'homme 122

8.1. Devenir de l'uranium après incorporation	122
8.1.1. Biocinétique de l'U	122
8.1.2. Distribution, localisation tissulaire rénale, pulmonaire et cérébrale	123
8.2. Composantes radiologiques et chimiques de la toxicité de l'uranium	123
8.3. Données toxicologiques/expérimentales	124
8.4. Données épidémiologiques	125
8.4.1. Formes rapidement solubles de l'uranium	126
8.4.2. Formes lentement/peu solubles de l'uranium	127
8.4.3. Formes moyennement solubles et « Reste, inclassable, mix »	127
8.4.4. Conclusions concernant les connaissances apportées par les études épidémiologiques	128
8.5. Références	129

Annexe 9. Surveillance individuelle de l'exposition interne des personnes par les composés de l'uranium 137

9.1. Mesures de la contamination interne : les différents types d'examen	137
9.1.1. Mesure dans les excréta	137
9.1.2. Mesures anthroporadiométriques	137
9.2. Interprétation des résultats et estimation de la dose interne à partir des mesures	138
9.2.1. Prise en compte de l'apport alimentaire hors accident	138
9.2.2. Calcul dosimétrique	138
9.3. Eléments de stratégie de mesure en post-accidentel	139
9.4. Capacités des moyens de mesure radiotoxicologique de l'IRSN	139
9.5. Traitements des contaminations par l'uranium	140

9.6. Références.....	141
----------------------	-----

Annexe 10. Éléments sur l'évaluation de l'impact chimique..... 142

10.1. Étapes d'une évaluation d'impact chimique	142
10.1.1. Sélection des substances et identification des dangers	142
10.1.2. Évaluation des relations doses-réponse.....	142
10.1.3. Évaluation de l'exposition	143
10.1.4. Caractérisation du risque	143
10.2. Toxicité chimique de l'uranium et valeurs de référence associées	144
10.2.1. Valeurs toxicologiques de référence (VTR)	144
10.2.2. Valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP).....	145
10.3. Références.....	145

Annexe 11. Les voies d'exposition et leurs contributions 147

11.1. Scénarios considérés	147
11.2. Paramètres de calcul considérés	147
11.2.1. Inhalation des particules remises en suspension	147
11.2.2. Ingestion involontaire de sol et de poussières	148
11.2.3. Ingestion de denrées alimentaires contaminées.....	148
11.3. Évaluation de l'impact radiologique	148
11.4. Évaluation de l'impact chimique	151
11.5. Comparaison des activités dans les denrées aux NMA	155
11.6. Conclusion sur l'évaluation des impacts radiologique et chimique en phase post-accidentelle.....	157
11.7. Détail des voies d'exposition.....	157
11.7.1. Exposition externe	157
11.7.2. Ingestion d'aliments contaminés	157
11.7.3. Ingestion involontaire de sol et de poussière.....	158
11.7.4. Remise en suspension	158
11.8. Références.....	159

Annexe 1. Saisine ASN



RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT
ET DES SITUATIONS D'URGENCE

CODEP-DEU-2021-026066
SAISI-DEU-2021-0128
Affaire suivie par : Florence Gabillaud-Poillion
Tél : 01 46 16 40 59
Fax : 01 41 16 44 29
Mel : florence.gabillaud-poillion@asn.fr

Montrouge, le 20 décembre 2021

Monsieur le Directeur Général
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire
BP 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

Objet : Saisine relative à la doctrine post-accidentelle pour des accidents autres que ceux pouvant intervenir sur un CNPE

Les travaux menés dans le cadre du CODIRPA depuis 2005 ont abouti à l'élaboration d'éléments de doctrine pour la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire. Après la publication de nouvelles recommandations¹ en 2019 concernant la gestion post-accidentelle d'un accident nucléaire, le CODIRPA souhaite mettre en place un groupe de travail pluraliste afin d'examiner la pertinence de la doctrine pour des accidents nucléaires ou radiologiques autres que ceux pouvant intervenir sur un CNPE. Ceux-ci concernent principalement les installations nucléaires de base (INB, INBS) pouvant émettre des produits radioactifs émetteurs alpha, du tritium, ou des produits de fission à vie longue (cycle aval du combustible) ainsi que les sources de haute activité et les transports de substances radioactives, etc.

Compte-tenu de l'étendue du sujet et des enjeux, l'ASN et l'IRSN avaient initialement identifié le périmètre de l'appui technique qui devra être apporté par l'IRSN aux membres du Codirpa :

- Analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle en cas de rejets d'émetteurs alphas à partir de l'exemple du plutonium ;
- Recenser et classer les autres types de rejets pour lesquels il conviendrait de s'interroger ;
- Analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle pour les radionucléides identifiés dans l'étape précédente (autres que le plutonium).

Concernant le premier point, une première saisine portant sur l'analyse de la pertinence de la doctrine post-accidentelle en cas de rejets de plutonium a été remise par l'IRSN et présentée au sein du groupe de travail du CODIRPA. La qualité de l'appui qui a été fourni par vos services dans ce cadre a été particulièrement appréciée au sein du GT. Ce travail va permettre au groupe de proposer des premières évolutions à apporter à la doctrine actuelle.

La présente saisine vise à alimenter les travaux du GT en traitant spécifiquement le cas de rejets d'uranium. Le recensement des autres types de rejet ainsi que l'analyse plus globale de la pertinence de la doctrine post-accidentelle seront demandés dans une seconde saisine (échéance 2023).

Dans le cadre de la présente saisine, je vous demande de travailler spécifiquement sur les rejets d'uranium et donc :

- o De préciser, les voies de transfert des radionucléides dans les compartiments de l'environnement et les productions agricoles, les moyens et capacités disponibles de mesure dans les aliments et les matrices environnementales.

¹ Ref. CODEP-ASN-DEU-2019-043679 du 14 juin 2019

www.asn.fr
15, rue Louis-Lejeune • 92541 Montrouge cedex
Téléphone 01 46 16 40 00 • Fax 01 46 16 44 21

- De préciser, les effets sanitaires (radiologiques et chimiques) des radionucléides sur l'homme et les conséquences à long terme (effets stochastiques), la sensibilité des voies d'exposition dans l'objectif d'avoir des éléments pertinents pour la révision de la doctrine.
- Sur la base des éléments précédents, d'analyser la pertinence de la doctrine post-accidentelle, à savoir l'identification des points de la doctrine post-accidentelle (dans sa version de 2019) qui nécessitent une réflexion du GT pour les rejets d'uranium.

Les travaux que vous mènerez permettront notamment d'apporter au GT des éléments techniques nécessaires à la définition des actions de protection de la population en se basant sur des scénarios de contamination fictifs, décorrélés des scénarios d'accident.

Je vous saurais gré de bien vouloir nous présenter un point d'avancement en mars 2022 puis une présentation et des premières conclusions lors d'une réunion du GT envisagée au début de l'été 2022.

Un rapport définitif du même type que celui produit pour le cas des rejets de plutonium est attendu pour décembre 2022.

**Le Directeur de l'environnement
et des situations d'urgence**



Olivier RIVIERE

Annexe 2. Le cycle du combustible

La fabrication des combustibles des réacteurs nucléaires, la gestion de ces combustibles une fois utilisés, ainsi que des déchets associés, nécessitent de nombreuses opérations industrielles. L'ensemble de ces opérations est qualifié communément de « cycle du combustible » qui comprend en France :

- la fabrication de combustibles à base d'uranium ;
- le traitement des combustibles une fois utilisés en réacteur ;
- la fabrication de combustibles dits MOX à partir du plutonium issu de ce traitement ;
- l'entreposage des combustibles non traités ;
- le traitement et l'entreposage des déchets associés aux opérations précitées ;
- les transports nécessaires à ces différentes opérations (cf. Figure A2 - 1).

Le présent document ne traite pas du cycle du combustible pour les installations relevant de la défense, bien que de façon générique, le cycle du combustible mis en œuvre dans les réacteurs embarqués, reste analogue à l'exception du retraitement.

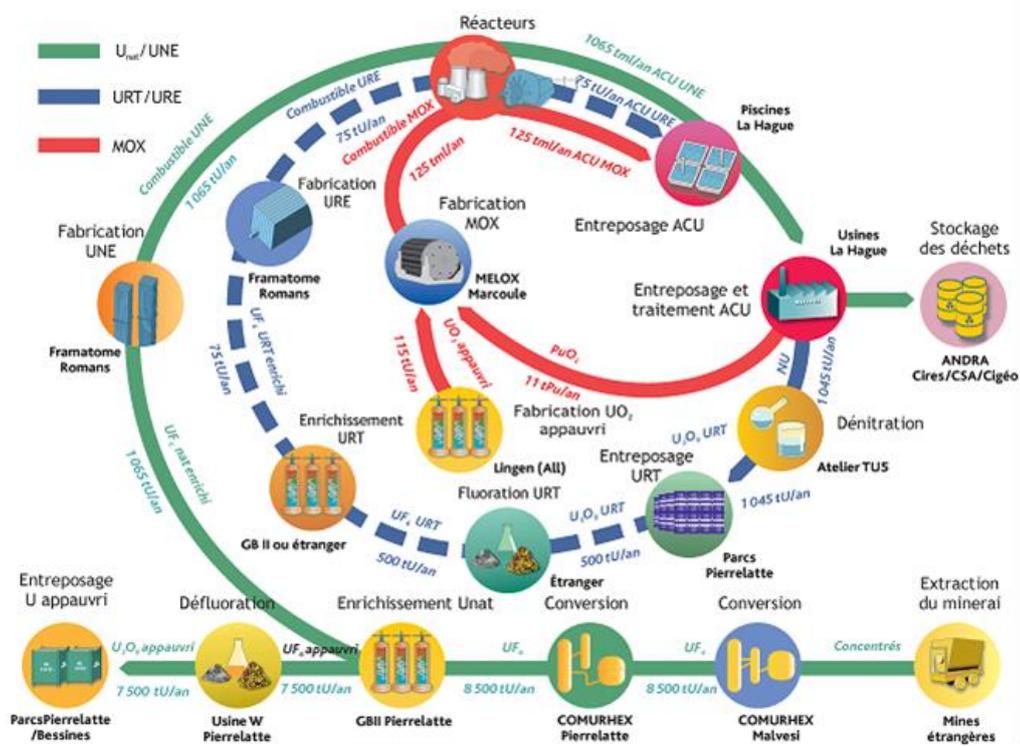


Figure A2 - 1 : Cycle du combustible nucléaire

Dans le cycle du combustible, l'uranium est présent sous différentes formes : oxydé, fluoré, nitré. Les sites et installations qui présentent un risque de rejet d'uranium sont présentés ci-après et la forme physico-chimique de l'uranium est précisée. Les typologies accidentelles et les formes physico chimiques redoutées lors des transports sont identiques à celles identifiées pour le site expéditeur. Les installations de type réacteurs de recherche ou les piscines d'entreposage de combustibles irradiés, ne sont pas traités dans ce document car les rejets d'uranium pouvant résulter des typologies d'accidents de ces installations (fusion du combustible, accident de criticité...) ne sont pas prépondérants par rapport aux rejets de produits de fission.

2.1. Installations mettant en œuvre de l'Uranium

2.1.1. Site de Malvési

Les principales étapes du procédé mis en œuvre à Malvési sont :

- la dissolution des concentrés miniers (uranates ou oxydes) en milieu nitrique, qui permet l'obtention de nitrate d'uranyle ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) impur ;
- la purification de l'uranium (séparation des impuretés chimiques et radioactives) par extraction liquide-liquide ;
- la concentration puis la dénitration thermique, de façon à obtenir du trioxyde d'uranium (UO_3) ;
- la réduction du trioxyde d'uranium en dioxyde (UO_2), puis son hydrofluoruration afin de former de l' UF_4 .

2.1.2. Site de Pierrelatte (Tricastin)

2.1.2.1. Usine Philippe Coste : conversion de l' UF_4 en UF_6

L'usine Philippe Coste est classée ICPE Seveso seuil haut. Orano, qui exploite le site, y procède à la transformation de tétrafluorure d'uranium (UF_4), en provenance du site de Malvési, en hexafluorure d'uranium (UF_6).

Dans l'installation, l' UF_6 , solidifié dans des cristallisoirs, est liquéfié puis coulé, filtré et conditionné dans des conteneurs 48Y placés dans des enceintes de confinement. Les conteneurs 48Y sont ensuite entreposés quatre jours dans une aire d'entreposage, située à l'intérieur des bâtiments et maintenue à 20°C afin de solidifier l' UF_6 avant son évacuation vers une aire de stockage extérieure.

Dans cette installation, le principal risque de rejet d'uranium est la fuite d' UF_6 . Celle-ci conduirait à l'hydrolyse de l' UF_6 avec l'humidité de l'air et la formation d'aérosols d' UO_2F_2 et d' HF gazeux, ce dernier étant très toxique. Cette réaction est rapide et peut être totale lorsque que l' UF_6 est à l'état liquide ou gazeux. Elle peut survenir également lorsque l' UF_6 à l'état solide est en contact avec de l'eau mais les rejets d'uranium ou d' HF à l'atmosphère restent limités. À température ambiante l' UF_6 est à l'état solide. Aussi, un risque de relâchement notable d'uranium est présent uniquement en cas de perte d'intégrité des conteneurs d' UF_6 concomitante à une chauffe du composé dans le cadre du procédé mis en œuvre dans l'installation ou en cas d'incendie ou d'explosion à proximité de conteneurs d' UF_6 (cas de la chute d'avion sur un parc).

2.1.2.2. SOCATRI

L'installation de la société SOCATRI, implantée sur le site de Pierrelatte, est une INB dont les principales activités sont la maintenance d'équipements, la collecte et le traitement des effluents et des déchets nucléaires en provenance de l'usine Georges Besse II. L'installation assure ainsi, entre autres activités, la décontamination de matériels et la récupération de l'uranium. Les typologies d'accidents pouvant conduire à un rejet d'uranium sont l'incendie et les fuites d'effluents liquides.

2.1.2.3. Usine Georges-Besse II (GB2) : enrichissement

L'usine Georges-Besse II est en charge de produire de l'uranium enrichi (et produit indirectement de grandes quantités d'uranium appauvri) à partir de l' UF_6 produit dans l'usine Philippe Coste. L'uranium y est présent sous forme d' UF_6 . Les typologies d'accidents pouvant conduire à un rejet notable d'uranium sont les mêmes que pour l'usine Philippe Coste présentée ci-avant.

L'usine GB-II produit jusqu'à présent de l' UF_6 enrichi à partir d' UF_6 à l'isotopie de l'uranium naturel, mais peut, selon son Décret d'Autorisation de Création (DAC), en produire à partir d'uranium de retraitement. À date, Orano n'a pas encore traité d'uranium issu du retraitement.

2.1.2.4. Usine W : conversion uranium appauvri

L'ICPE W a pour fonction de transformer l'UF₆ appauvri issu des usines d'enrichissement en sesquioxyde d'uranium (U₃O₈), stable et apte à un entreposage de longue durée. Les types d'accidents pouvant conduire à un rejet d'uranium sont la fuite d'UF₆ ainsi que l'incendie ou l'explosion pouvant disperser de la poudre d'U₃O₈. L'U₃O₈ est conditionné dans des conteneurs cubiques DV 70 d'une capacité unitaire comprise entre 10 et 12 tonnes d'uranium.

2.1.2.5. Atelier TU5 : conversion uranium de retraitement

L'atelier de conversion de nitrate d'uranyle de retraitement (TU5) a pour fonction la conversion des solutions de nitrate d'uranyle issu du retraitement, en provenance du site de la Hague, avec une isotopie en ²³⁵U inférieure à 1 %, en sesquioxyde d'uranium U₃O₈, apte à un entreposage de longue durée.

Les risques principaux sur cette installation sont les effets liés à la toxicité chimique des produits traités, le déversement de solutions de nitrate d'uranyle et le rejet de poudre d'U₃O₈ (incendie et fuite).

2.1.2.6. Entreposages :

Le site nucléaire du Tricastin regroupe des installations d'entreposage de différentes matières uranifères (UF₆, U₃O₈, nitrate d'uranyle, ...), l'uranium pouvant être à isotopie naturelle ou issue du retraitement. Les deux matières uranifères principales sont le sesquioxyde d'uranium naturel appauvri et le sesquioxyde d'uranium de retraitement (cf. W et TU5).

L'U₃O₈ de retraitement est entreposé sur le site du Tricastin dans les mêmes installations que l'U₃O₈ appauvri ou envoyé à l'étranger pour être converti en UF₆ et enrichi. Vis à vis des risques d'exposition externe, le sesquioxyde d'uranium de retraitement (noté « U₃O₈ RT ») est plus irradiant que l'uranium naturel, il est conditionné dans des futs pétroliers à raison d'environ 200 kg par fût.

Le Tableau A2 - 1 précise l'ordre de grandeur (nombre et volume) des entreposages d'U₃O₈ sur le site de Tricastin.

Tableau A2 - 1 : Ordre de grandeur (nombre et volume) des entreposages d'U₃O₈ sur le site de Tricastin

	U-appauvri	URT
Type d'emballage	cube DV-70	fût 200-L
Volume unitaire emballage (m ³)	3,408	0,2
Nombre d'emballages en 2016	1 139	4 298
Production 2016 (tU/an)	10 390	1 085
Volume annuel à entreposer (m ³ /an)	2 774	797

2.1.3. Bessines

Le site de Bessines accueille des entreposages de sesquioxyde d'uranium naturel appauvri expédié depuis l'atelier TU5 du Tricastin.

2.1.4. Site de Romans sur Isère

2.1.4.1. FBFC : INB n°98

À l'issue du processus d'enrichissement de l'uranium sur le site de Tricastin, l'UF₆ est transféré en conteneur 30B vers Romans sur Isère où le combustible nucléaire qui sera utilisé dans les REP est fabriqué dans l'installation FBFC (INB 98). L'UF₆, mis en œuvre dans cette installation est enrichi au maximum à 5 % en ²³⁵U et peut être d'origine naturelle ou issu de retraitement (URE). Il est transformé en poudre d'oxyde d'uranium pour constituer, après traitement, des crayons de combustible, réunis ensuite sous forme d'assemblages. Pour mémoire, ce procédé met

en œuvre des poudres d'UO₂F₂ et d'U₃O₈ mais les quantités mises en œuvre restent faibles par rapport aux quantités d'UF₆ ou d'UO₂.

Le principal risque du procédé de conversion est la fuite d'UF₆ lors du chauffage d'un conteneur 30 B. Par ailleurs, un relâchement d'UF₆ peut avoir lieu en cas de chute d'avion sur le parc d'entreposage de conteneurs d'UF₆.

2.1.4.2. CERCA : INB n°63

L'INB 63, situé sur le site de Romans sur Isère, fabrique des combustibles à base d'uranium pour les réacteurs de recherche. Deux types de combustible sont fabriqués dans cette installation : des combustibles à plaques (alliage uranium-aluminium ou uranium-silicium) destinés aux réacteurs de recherche tels que le RHF et des combustibles destinés aux réacteurs de recherche de type TRIGA, composés d'un alliage uranium-zirconium hydruré. L'uranium présent est principalement d'origine naturelle et enrichi. Il se trouve sous la forme d'uranium métallique, d'alliages métalliques UAl ou U-Si, U₃Si₂, ou encore d'alliage UZr hydruré. Il peut être sous toutes les formes physiques entre la poudre et la constitution d'un assemblage combustible (poudre, plaquettes, plaques gainées ou non, barreaux...).

Les principaux risques de relâchement d'uranium dans cette installation sont liés au risque de mise en suspension des poudres d'uranium, en cas d'incendie ou d'explosion dans les zones contenant des poudres.

2.1.5. Site de Lingen

L'usine Framatome de Lingen (Allemagne) produit de l'UO₂ appauvri pour Melox.

Ce flux de matière doit être remplacé par une production d'UO₂ appauvri à partir du site Malvési à partir de 2023.

2.1.6. Site de La Hague

La majorité des procédés mis en œuvre sur le site de La Hague pour le retraitement des assemblages combustibles irradiés présentent d'autres risques que le rejet d'uranium, objet de cette saisine.

Seul l'atelier T5 présente un risque de relâchement notable d'uranium. Il assure l'entreposage du nitrate d'uranyle purifié et concentré en uranium en provenance de l'atelier T3 et son expédition vers Pierrelatte (cf. atelier TU5). Le risque principal de rejet en uranium identifié pour cet atelier est le déversement de nitrate d'uranyle.

2.2. Typologies accidentelles pouvant conduire à un rejet notable d'uranium

Les principales situations accidentelles redoutées sur ces installations entraînant un rejet notable d'uranium dans l'environnement, et présentées notamment dans les PUI des exploitants, sont :

- les fuites d'UF₆ ou de nitrate d'uranyle ;
- l'incendie ou l'explosion pouvant disperser de la poudre d'UO₂, d'U₃O₈ ou d'UF₄.

2.3. Accidents passés mettant en œuvre de l'uranium

2.3.1. COMURHEX : Accident du 1er juillet 1977

Lors d'une opération d'échantillonnage sur un conteneur 48 Y (8,8 tonnes d'UF₆ à l'état liquide à 95°C), placé à l'extérieur des bâtiments, l'arrachement de la vanne a entraîné une ouverture d'environ 25 mm de diamètre et le rejet d'une quantité d'UF₆ évaluée à 7,1 tonnes. L'intervention a débuté 11 minutes après l'apparition de la fuite : 13,5 m³ d'eau ont été répandus sur le conteneur en une demi-heure, 600 kg de CO₂ ont été pulvérisés pendant les premières minutes de l'intervention, de la chaux éteinte a été répandue sur la zone contaminée. Au total, l'émission de vapeurs toxiques a duré 45 minutes.

Résultats des mesures effectuées dans l'environnement :

- Les quantités transférées dans l'atmosphère étaient de l'ordre de 330 kg pour l'uranium et 1600 kg pour l'HF.
- La quantité d'UF₆ vaporisée était inférieure à 50 % de la quantité ayant quitté le conteneur, l'acide fluorhydrique a été détecté jusqu'à 15 km sous le vent.

2.3.2. SOCATRI : Accident du 7 juillet 2008 :

Le 7 juillet 2008 vers 23h00, le débordement d'une cuve d'entreposage de la station de traitement des effluents uranifères a entraîné le déversement, dans la rétention de cette cuve, d'un volume d'environ 30 m³ de solution contenant de l'uranium (teneur en uranium de 12 g/l). La perte d'intégrité de la rétention a conduit au déversement d'une partie de la solution dans le bâtiment, avec écoulement dans le sol ainsi que dans le réseau d'évacuation des eaux pluviales. Ce réseau rejoint la rivière « La Gaffière », puis « le Lauzon » et enfin le Rhône.

Annexe 3. Niveaux d'activité dans l'environnement

3.1. Bruit de fond dans l'environnement français métropolitain

3.1.1. Sol

L'activité de l'uranium mesurée dans les principales composantes de l'environnement est liée à celle des sols et des formations géologiques sous-jacentes. Si l'activité moyenne pour l'uranium-238 dans les sols sur le territoire métropolitain, tout type de sol confondu, est de l'ordre de 40 Bq/kg sec, elle varie de manière importante selon les formations géologiques (Figure A3 - 1) : les plus élevées sont généralement rencontrées dans les granites, notamment le Massif Central et le Massif Armoricain, les plus faibles dans les roches sédimentaires [A3-1]. La différence des niveaux d'activité est d'au moins un facteur 5 entre ces deux formations. Des teneurs de 60 000 Bq/kg en ^{238}U peuvent être rencontrées dans les sous-sols du bassin versant granitique du lac Nègre (Alpes du Sud) [A3-2].

Naturellement, les activités de l'uranium-235 sont environ 20 fois plus faibles que celles de l'uranium-238 (en masse, le rapport entre l'uranium-235 et l'uranium-238 est de 0,72 %). Un rapport d'activité entre l'uranium-238 et l'uranium-235 inférieur à 20 traduit un enrichissement en uranium-235 (uranium enrichi) ; un rapport d'activité plus élevé correspond à de l'uranium appauvri.

Dans les roches, l'uranium-234 est en équilibre avec l'uranium-238. Dans les sols, l'abondance de l'uranium-234 va varier notamment selon la composition minéralogique et les eaux drainant ces sols. Ainsi le rapport isotopique $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ sera différent de 1, et généralement compris entre 0,9 et 1,3.

L'uranium-236 est naturellement présent dans les sols avec une très faible abondance (10^{-12} à 10^{-8} % de l'uranium naturel [A3-3]), conduisant à des niveaux très faibles (de l'ordre de quelques dizaines de fg⁹/g, soit 10^{-4} Bq/kg) [A3-4].

L'uranium-233 constitue également un isotope de très faible abondance (10^{-13} à 10^{-9} % de l'uranium naturel [A3-5]), qui peut être rencontré dans la nature, notamment dans les minerais d'uranium. S'ajoute l'apport en ^{233}U par les anciens essais nucléaires atmosphériques, soit par les armes contenant de ^{233}U soit produit dans les armes thermonucléaires par la réaction $^{235}\text{U} (n, 3n) ^{233}\text{U}$.

⁹ 1fg=1.10⁻¹⁵g

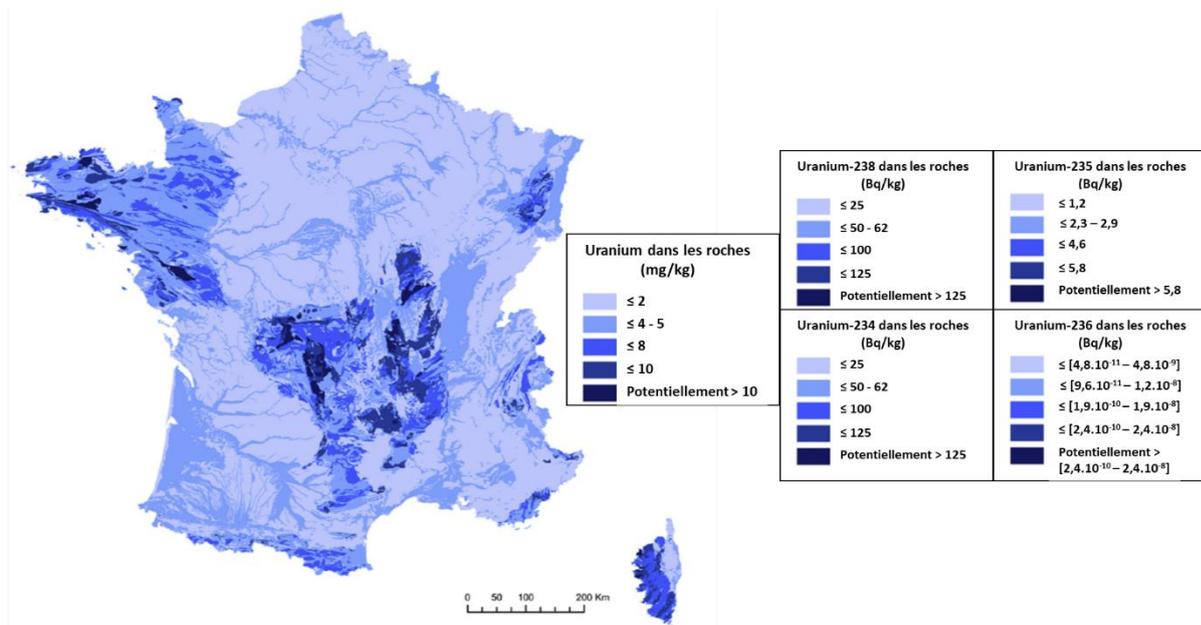


Figure A3 - 1 : Concentration moyenne de l'uranium dans les roches en France (sur la base des limites de la carte géologique nationale à l'échelle 1 : 1 000 000 ; mg/kg = ppm) [A3-6]

3.1.2. Autres compartiments

Dans les aérosols, l'activité volumique moyenne en uranium-238 en dehors de l'influence d'une industrie mettant en œuvre de l'uranium est comprise entre $2,6 \cdot 10^{-8}$ à $1,6 \cdot 10^{-7}$ Bq/m³ (moyenne de l'ordre de $1 \cdot 10^{-7}$ Bq/m³ [A3-7]).

L'uranium mesuré dans les productions animales et végétales, les eaux douces et les sédiments de rivières, provient initialement des roches du sous-sol. Les activités de l'uranium dans les eaux de surface et les eaux souterraines sont le reflet de la variabilité des teneurs en uranium dans les roches et les sols et des caractéristiques physico-chimiques des eaux [A3-7] (Figure A3 - 2). Il en est de même pour les sédiments (Figure A3 - 2). Des activités plus élevées peuvent être rencontrées dans les sédiments résultant soit d'anciennes activités anthropiques telles que les anciens sites miniers soit de zones naturelles d'accumulation :

- dans le bassin versant granitique du lac Nègre (Alpes du Sud) où des activités exceptionnelles en uranium (de 10 000 à 20 000 Bq/kg en ²³⁸U) peuvent être rencontrées dans les sédiments de surface, en aval de dépôts naturels uranifères de surface [A3-8] ;
- sur des plages du Golfe du Lion, notamment en Camargue, où les sables présentent en certains endroits une activité en ²³⁸U comprise entre 600 et 3 800 Bq.kg⁻¹ [A3-9]. Ces zones appelées « placers » sont associées à des minéraux lourds (apatites et zircons) résultant du cycle naturel de l'érosion des massifs, de transport alluvial des sédiments et de redistribution de sédiments côtiers.

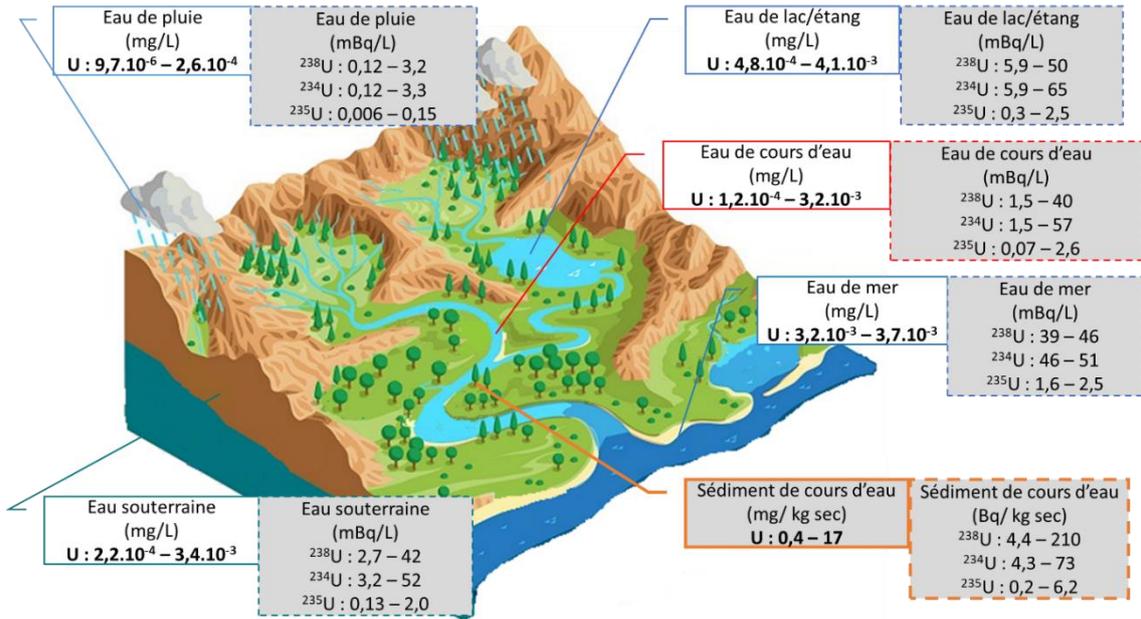


Figure A3 - 2 : Activité de l'uranium-238 dans les eaux et les sédiments de rivière en France métropolitaine.

Les activités de l'uranium dans les herbes, céréales et légumes feuilles sont présentées sur la Figure A3 - 3. Les niveaux d'uranium dans les plantes sont le reflet des niveaux d'uranium dans les sols couplés à la faible biodisponible de l'uranium (cf. § Annexe 4 : Comportement de l'Uranium dans les matrices environnementales).

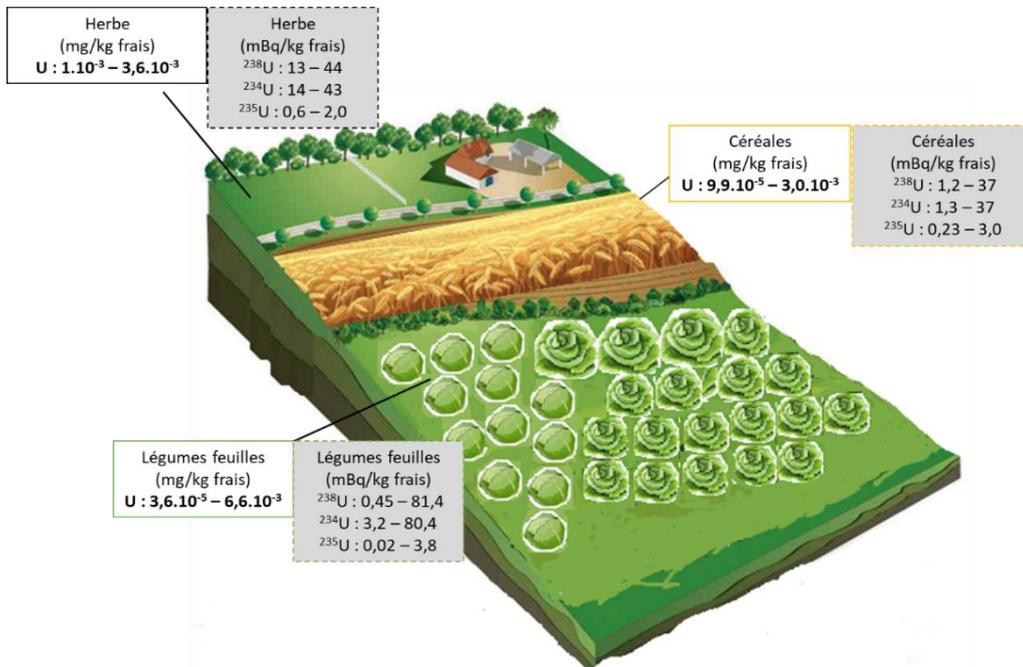


Figure A3 - 3 : Activité de l'uranium-238 dans l'herbe, les céréales et les légumes feuilles en France métropolitaine.

Dans le milieu marin, les niveaux d'activité en uranium-238 des différentes matrices suivies dans le cadre des missions de l'IRSN sont présentés sur la Figure A3 - 4 [A3-7][A3-10].

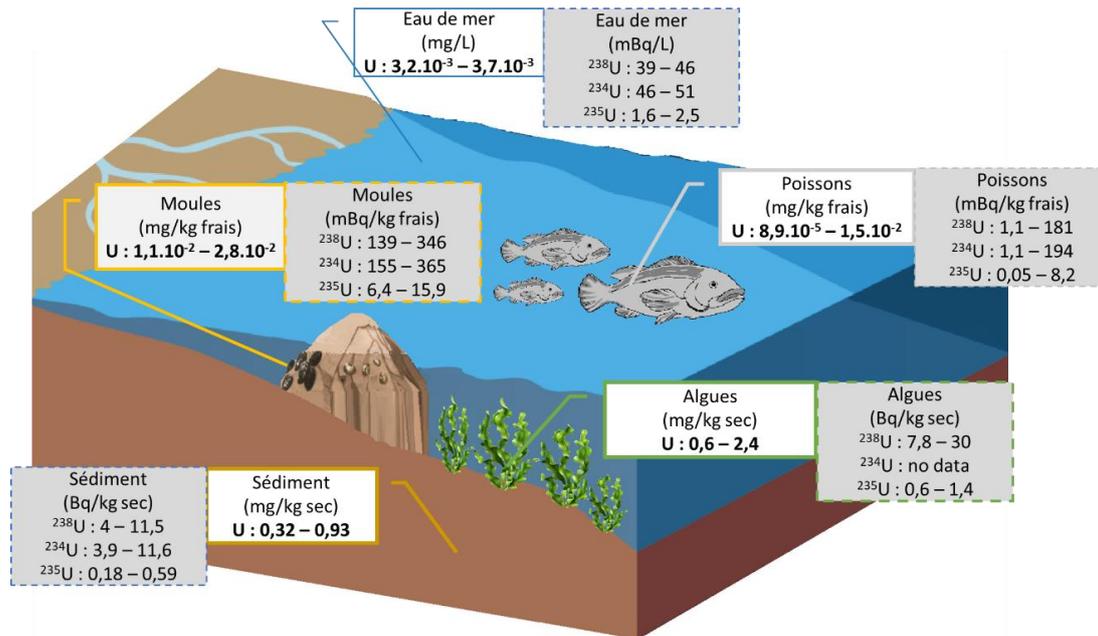


Figure A3 - 4 : activité de l'uranium-238 en milieu marin.

3.2. Niveaux d'activité autour de sites industriels

L'uranium est essentiellement rejeté dans l'environnement par les sites de l'amont du cycle du combustible nucléaire en charge de l'extraction et de l'exploitation du minerai d'uranium et de la production du combustible nucléaire. Sur le territoire français, il s'agit d'une part des anciens sites miniers et d'autre part des usines qui purifient, convertissent et enrichissent l'uranium (sites Orano de Malvézi et de Tricastin).

S'agissant de l'uranium 236, trois sources anthropiques peuvent être identifiées dans l'environnement : les retombées globales issues des essais nucléaires atmosphériques passés, les accidents nucléaires et les rejets autorisés des usines de retraitement des combustibles nucléaires [A3-11].

3.2.1. Sites miniers

En France, près de 250 sites ont fait l'objet d'activités de prospection et de reconnaissance de minéralisations uranifères mais également d'extraction entre 1948 et 2001 [A3-14]. Ces activités étaient essentiellement situées dans le Massif Central, le Massif Armoricaïn et Vendéen. Des travaux de reconnaissance ont également été effectués dans les Vosges, les Alpes et le Nord de la Gironde. En plus de ces activités, des minéralisations uranifères non exploitées ont pu conduire à un marquage important en uranium dans les eaux, les sols et les sédiments, dépassant de plusieurs ordres de grandeur les activités maximales en uranium rencontrées dans les formations granitiques [A3-2].

La diversité des minerais d'uranium français exploités et traités a conduit à la production de 50 millions de tonnes de résidus miniers à la suite du traitement chimique du minerai et près de 200 millions de tonnes de stériles miniers, roches non exploitables économiquement [A3-15]. En plus de ces matériaux, plusieurs études ont montré l'accumulation de l'uranium en aval de ces sites miniers, et ce, dans certains milieux naturels riches en matières organiques naturelles comme les étangs, les lacs [A3-16] ou les zones humides ([A3-17] à [A3-22]). Une très grande gamme de variabilité de teneurs en uranium est ainsi observée dans les eaux continentales de surface, les sols et les sédiments (Tableau A3 - 1). Cette variabilité est en effet très dépendante de la nature des matériaux extraits des mines mais également des conditions physico-chimiques prédominantes à l'aval des sites.

Tableau A3 - 1 : Niveaux d'activité en uranium-238 et uranium-235 en amont et en aval des sites miniers en France (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale]).

Matrice	U-238	U-235
Eaux en amont des mines	2,3.10 ⁻² Bq/L [5,1.10 ⁻⁴ à 0,34]	1,7.10 ⁻⁴ Bq/L [3,7.10 ⁻⁶ à 2,4.10 ⁻³]
Eaux impactées par les mines	0,65 Bq/L [3,7.10 ⁻⁴ à 25]	4,7.10 ⁻³ Bq/L [2,7.10 ⁻⁶ à 0,18]
Sédiments/sols en amont des mines	260 Bq/kg [66 à 630]	1,9 Bq/kg [0,5 à 4,6]
Sédiments/sols impactés par les mines	14 420 Bq/kg [80 à 170 000]	105 Bq/kg [0,6 à 1 235]

3.2.2. Installations du cycle de l'uranium : conversion – enrichissement – fabrication

Les niveaux d'activité en uranium-238, uranium-234 et uranium-235 dans les sols autour des sites du cycle de l'uranium en France (conversion-enrichissement-fabrication) sont similaires aux niveaux naturels d'activité dans les sols (Tableau A3 - 2). En revanche, l'activité en uranium-236¹⁰ dans les sols est très supérieure aux niveaux naturels autour des sites de Malvesi, Romans-sur-Isère et Tricastin.

Tableau A3 - 2 : Niveaux d'activité en uranium dans les sols autour des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale]).

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Sol	Malvesi	56 Bq/kg [50 à 61]	2,4 Bq/kg [1,2 à 3,9]	55 Bq/kg [49 à 60]	0,13 Bq/kg [0,10 à 0,16]
	Romans-sur-Isère	20 Bq/kg [16 à 23]	0,9 Bq/kg [0,6 à 1,1]	20 Bq/kg [17 à 24]	0,017 Bq/kg ^(a)
	Tricastin	21 Bq/kg [12 à 33]	1,1 Bq/kg [0,5 à 1,7]	20 Bq/kg [11 à 32]	0,007 Bq/kg ^(a)

(a) : 1 donnée disponible

Pour les aérosols, les sites de Malvesi et de Tricastin contribuent à une augmentation locale de l'activité en uranium des poussières atmosphériques [A3-7] (Tableau A3 - 3). Pour le site de Romans-sur-Isère, les activités volumiques se rapprochent progressivement du fond radiologique du fait de la diminution des rejets de l'usine. En termes de rapports isotopiques, les rapports ²³⁵U/²³⁸U et ²³⁴U/²³⁸U sont dans la gamme des rapports isotopiques naturels.

Pour les eaux de surface, les activités des isotopes de l'uranium sont présentées dans le Tableau A3 - 4. La détection de l'uranium-236 autour de Malvesi et de Tricastin à des niveaux supérieures aux valeurs de bruit de fond, traduit l'influence de ces deux installations sur l'environnement. Les rapports isotopiques ²³⁵U/²³⁸U et ²³⁴U/²³⁸U sont dans la gamme des rapports isotopiques naturels.

¹⁰ L'²³⁶U est créé par activation de l'²³⁵U(n,γ)

Tableau A3 - 3 : Niveaux d'activité en uranium dans les aérosols autour des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale]).

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Aérosols	Malvesi	3,4 µBq/m ³ [0,15 à 17,6]	0,16 µBq/m ³ [0,007 à 0,79]	3,3 µBq/m ³ [0,14 à 16,9]	6,4.10 ⁻⁴ µBq/m ³ [1,9.10 ⁻⁵ à 3,1.10 ⁻³]
	Romans-sur-Isère	0,30 µBq/m ³ [0,09 à 0,64]	0,024 µBq/m ³ [0,007 à 0,039]	0,56 µBq/m ³ [0,18 à 0,90]	1,7.10 ⁻³ µBq/m ³ [2,3.10 ⁻⁴ à 3,0.10 ⁻³]
	Tricastin	0,49 µBq/m ³ [0,04 à 4,5]	0,023 µBq/m ³ [0,002 à 0,207]	0,45 µBq/m ³ [0,08 à 4,3]	3,1.10 ⁻³ µBq/m ³ [1,8.10 ⁻⁴ à 1,1.10 ⁻¹]

Tableau A3 - 4 : Niveaux d'activité en uranium dans les eaux de surface autour des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale]).

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Eaux de surface	Malvesi	2,4.10 ⁻² Bq/L [5,2.10 ⁻³ à 2,0.10 ⁻¹]	1,1.10 ⁻³ Bq/L [2,4.10 ⁻⁴ à 9,1.10 ⁻³]	3,4.10 ⁻² Bq/L [8,4.10 ⁻³ à 2,4.10 ⁻¹]	4,6.10 ⁻⁵ Bq/L [3,1.10 ⁻⁵ à 6,5.10 ⁻⁵]
	Romans-sur-Isère	2,1.10 ⁻² Bq/L [1,4.10 ⁻² à 3,0.10 ⁻²]	9,6.10 ⁻⁴ Bq/L [6,3.10 ⁻⁴ à 1,4.10 ⁻³]	2,2.10 ⁻² Bq/L [1,4.10 ⁻² à 3,2.10 ⁻²]	-(b)
	Tricastin	1,9.10 ⁻² Bq/L [2,6.10 ⁻³ à 5,0.10 ⁻¹]	9,4.10 ⁻⁴ Bq/L [1,2.10 ⁻⁴ à 2,2.10 ⁻²]	1,4.10 ⁻² Bq/L [3,2.10 ⁻³ à 4,9.10 ⁻¹]	2,2.10 ⁻⁴ Bq/L [2,4.10 ⁻⁵ à 6,2.10 ⁻⁴]

(b) : absence de donnée

Dans les sédiments de rivière (ou canal), les rapports isotopiques ²³⁵U/²³⁸U et ²³⁴U/²³⁸U sont dans la gamme des rapports isotopiques naturels. De l'uranium-236 est détecté sur les prélèvements de sédiments, quel que soit le site du cycle, à des niveaux supérieurs aux valeurs de bruit de fond, traduisant une influence des installations (Tableau A3 - 5).

Tableau A3 - 5 : Niveaux d'activité en uranium dans les sédiments des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale]).

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Sédiment de rivière (ou de canal)	Malvesi	36 Bq/kg sec [7 à 45]	1,6 Bq/kg sec [0,4 à 2,1]	35 Bq/kg sec [8 à 45]	2,7.10 ⁻² Bq/kg sec [2,0.10 ⁻² à 4,1.10 ⁻²]
	Romans-sur-Isère	30 Bq/kg sec [12 à 40]	1,4 Bq/kg sec [0,6 à 1,8]	29 Bq/kg sec [13 à 40]	1,7.10 ⁻² Bq/kg sec (a)
	Tricastin	28 Bq/kg sec [9 à 71]	1,3 Bq/kg sec [0,5 à 3,3]	27 Bq/kg sec [9 à 79]	1,1.10 ⁻¹ Bq/kg sec [3,2.10 ⁻³ à 7,2.10 ⁻¹]

(a) : 1 donnée disponible

Pour la matrice herbe, pour le site de Malvesi, les activités en uranium-238 les plus élevées sont observées à l'est du site, sous le vent dominant. En comparaison, les activités mesurées au nord du site sont en moyenne de l'ordre de 3 Bq/kg sec. En termes de rapports isotopiques, les rapports isotopiques ²³⁵U/²³⁸U et ²³⁴U/²³⁸U sont dans la gamme des rapports isotopiques naturels. L'activité moyenne de l'uranium-238 dans l'herbe pour les sites de Romans-sur-Isère et de Tricastin est similaire à celle du bruit de fond (Tableau A3 - 6).

Tableau A3 - 6 : Niveaux d'activité en uranium dans les herbes autour des installations du cycle de l'uranium (valeur moyenne [valeur minimale à valeur maximale]).

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Herbes	Malvesi	3,9 Bq/kg sec [0,5 à 30]	0,24 Bq/kg sec [0,05 à 1,79]	3,9 Bq/kg sec [0,4 à 28]	2,4.10 ⁻⁴ (a)
	Romans-sur-Isère	0,08 Bq/kg sec [0,05 à 0,10]	0,009 Bq/kg sec [0,005 à 0,014]	0,11 Bq/kg sec [0,09 à 0,12]	- (b)
	Tricastin	0,13 Bq/kg sec [0,04 à 0,35]	0,0046 Bq/kg sec [0,0044 à 0,0048]	0,14 Bq/kg sec [0,06 à 0,36]	5,5.10 ⁻⁴ (a)
Rapport poids frais/poids sec				3,4 [1,5 – 7,2]	

(a) : 1 donnée disponible

(b) : absence de donnée

3.2.3. CNPE

Autour des CNPE, les niveaux de l'uranium sont similaires à ceux d'un environnement hors influence. Toutefois, il est à noter un rejet d'uranium-236 dans les eaux de La Loire à la suite des deux accidents nucléaires, répertoriés en 1969 et en 1980, attribués aux anciens réacteurs UNGG de la centrale de Saint-Laurent-des-Eaux. En 1980, une contamination importante de l'eau de la piscine d'entreposage des combustibles usés du réacteur SLA2 a été identifiée, avec un rejet d'1 GBq d'émetteurs alpha sur l'année 1980, dans les eaux de la Loire [A3-12]. Récemment, l'analyse de l'²³⁶U couplé à la détermination du rapport isotopique ²³³U/²³⁶U a également permis d'identifier ces accidents dans les sédiments [A3-11].

3.2.4. Autres sites industriels

3.2.4.1. Phosphogypse

Lors de la production d'engrais phosphatés ou d'acide phosphorique, l'attaque du minerai de phosphate de calcium forme un sous-produit, le phosphogypse, qui contient entre autres de l'uranium-238 (environ 14 %) présents naturellement dans la roche calcaire. Dans les années 1980, la production annuelle française était d'environ 7 millions de tonnes de phosphogypses, très concentrée géographiquement, notamment sur les sites de production normands (Rouen – Le Havre, 63 % de la production nationale) et de Wattlelos dans le Nord (9 %). Jusqu'aux années 1990, les usines françaises rejetaient en mer les phosphogypses ou les stockaient en terrils. Les principaux sites de stockage sont ainsi localisés à proximité des principaux lieux de production : Anneville-Ambourville (60 ha), Wattlelos (50 ha), Saint-Étienne-du-Rouvray (30 ha), Rogerville (17 ha) et Douvrin (20 ha). Certains sites de production comme Wattlelos et Rouen (site du Petit Quevilly) ont depuis fait l'objet d'une réhabilitation. Les autres sites continuent de faire l'objet d'une surveillance régulière et en particulier au niveau des eaux souterraines [A3-7].

Des mesures d'uranium isotopique réalisées dans des sédiments de la Seine, en aval de Rouen témoignent de l'enregistrement de ces rejets passés de phosphogypses (Tableau A3 - 7) [A3-13].

3.2.4.2. Mange-Garri

L'usine de production d'aluminium de Gardanne produit depuis 1894 de l'alumine, Al₂O₃, à partir de minerai d'aluminium, aujourd'hui importé de Guinée. Cette activité industrielle conduit à la production de déchets liquides et solides, appelés communément « boues rouges » et stockées, dans des bassins de décantation, à 2,5 km de l'unité de production d'alumine, susceptibles de contenir des NORM (Naturally Occuring Radioactive Materials :

NORM) [A3-7]. Ces boues et le minerai de bauxite présentent des niveaux d'activités supérieurs aux activités du bruit de fond dans les sols (Tableau A3 - 7).

Tableau A3 - 7 : Niveaux d'activité en uranium autour de site de phosphogypse ou d'aluminium.

Matrice	Site	U-238	U-235	U-234	U-236
Sédiment	Aval Rouen – Aval site de phosphogypse	[20 à 250] Bq/kg sec	[0,8 à 20] Bq/kg sec	- (b)	- (b)
Boues rouges	Mange-Garri	189 Bq/kg sec	- (b)	189 Bq/kg sec	- (b)
Minerai de bauxite	Mange-Garri	83 Bq/kg sec	- (b)	83 Bq/kg sec	- (b)

(b) : absence de donnée

3.3. Résumé

Les tableaux suivants synthétisent les données pour les différentes matrices pour les zones hors influence, autour des industries du cycle du combustible et à proximité des sites miniers.

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)	
Sol	234U	BDF (Hors influence)	21,0	[18,2 – 23,1]	Bq/kg sec	
		Industries du cycle du combustible	33,5	[11,3 – 60,4]	Bq/kg sec	
		Proximité sites miniers				
	235U	BDF (Hors influence)	1,40	[0,73 – 2,40]	Bq/kg sec	
		Industries du cycle du combustible	2,15	[0,54 – 3,90]	Bq/kg sec	
		Proximité sites miniers				
	236U	BDF (Hors influence)			[1,2.10-10 – 1,2.10-8]	Bq/kg sec
		Industries du cycle du combustible			[7,2.10-3 - 1,2.10-2]	Bq/kg sec
		Proximité sites miniers				
	238U	BDF (Hors influence)	43	[11 – 93]	Bq/kg sec	
		Industries du cycle du combustible	34	[12 – 61]	Bq/kg sec	
		Proximité sites miniers				
Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)	
Aérosols	234U	BDF (Hors influence)	0,10	[0,03 – 0,20]	μBq/m ³	
		Industries du cycle du combustible	0,90	[0,08 – 16,9]	μBq/m ³	
		Proximité sites miniers				
	235U	BDF (Hors influence)	0,0041	[0,0012 – 0,0074]	μBq/m ³	
		Industries du cycle du combustible	0,0365	[0,0018 – 0,79]	μBq/m ³	
		Proximité sites miniers				
	236U	BDF (Hors influence)				
		Industries du cycle du combustible	2,72.10 ⁻³		[1,93.10 ⁻⁵ – 1,12.10 ⁻¹]	μBq/m ³
		Proximité sites miniers				
	238U	BDF (Hors influence)	0,09	[0,03 – 0,16]	μBq/m ³	
		Industries du cycle du combustible	0,78	[0,04 – 17,6]	μBq/m ³	
		Proximité sites miniers				

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Eau de surface	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	Cours d'eau : 14,9 Lac/étang : 27,5	Cours d'eau : [1,5 – 57,0] Lac/étang : [5,9 – 65,0]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible	Cours d'eau : 20,7	Cours d'eau : [3,2 – 238]	mBq/L
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	Cours d'eau : 0,6 Lac/étang : 1,1	Cours d'eau : [0,07 – 2,6] Lac/étang : [0,27 – 2,5]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible	Cours d'eau : 0,85	Cours d'eau : [0,12 – 10,2]	mBq/L
		Proximité sites miniers		cf. Annexe 3 § 3.2.1	
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	Cours d'eau : 0,218	Cours d'eau : [0,031 – 0,616]	mBq/L
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	Cours d'eau : 12,3 Lac/étang : 22,5	Cours d'eau : [1,5 – 39,5] Lac/étang : [5,9 – 51]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible	Cours d'eau : 17,6	Cours d'eau : [2,6 – 1980]	mBq/L
		Proximité sites miniers		cf. Annexe 3 § 3.2.1	

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Eau souterraine	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	10,1	[3,2 – 52]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible	0,0314	[0,0042 – 0,4939]	mBq/L
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	0,43	[0,13 – 2,0]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible	0,0016	[0,00014 – 0,0217]	mBq/L
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	0,000025	[0,000024 – 0,000026] ¹¹	mBq/L
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	8,6	[2,7 – 42,3]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible	0,0273	[0,0029 – 0,495]	mBq/L
		Proximité sites miniers			

¹¹ Nombre de données disponibles : 2

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Eau de mer	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	48,6	[46 – 51]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	2,2	[1,6 – 2,5]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	42,3	[39 – 46]	mBq/L
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale –maximale]	(unité)	
Sédiment continental	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	26	[4,3 – 73]	Bq/kg sec	
		Industries du cycle du combustible	27	[8 – 79]	Bq/kg sec	
		Proximité sites miniers		[127 – 4 566]	Bq/kg sec	
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	1,6	[0,2 – 6,2]	Bq/kg sec	
		Industries du cycle du combustible	1,3	[0,4 – 3,4]	Bq/kg sec	
		Proximité sites miniers		[1 - 30]	Bq/kg sec	
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)				
		Industries du cycle du combustible			[3,2.10 ⁻³ – 7.2.10 ⁻¹]	Bq/kg sec
		Proximité sites miniers			[4,7.10 ⁻⁶ - 4,7.10 ⁻⁴]	Bq/kg sec
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	33	[4,4 – 210]	Bq/kg sec	
		Industries du cycle du combustible	28	[74 – 71]	Bq/kg sec	
		Proximité sites miniers			[80 – 170 000]	Bq/kg sec

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Herbe	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	23	[14 – 43]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	68	[24 – 215]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	1,1	[0,6 – 2,0]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	2,5	[1,2 – 4,6]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	0,555	[0,151 - 0,871]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	24	[13 – 44]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	83	[24 – 209]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Céréales	²³⁴ U	BDF (Hors influence)			mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	9	[1,3 – 37]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	1,3	[0,23 – 3,0]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible			mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	9	[1,2 – 37]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Légumes feuilles	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	19,4	[3,2 – 80,4]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	58	[8 – 160]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	0,8	[0,02 – 3,8]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	2,7	[0,4 – 7,1]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	0,11	[0,05 – 0,16]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	17,2	[0,45 – 81,4]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	60	[8 – 160]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Poissons	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	56	[1,1 – 194]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	65	[1,1 – 373]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	2,3	[0,05 – 8,2]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	1,7	[0,05 – 6,8]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible	0,055	[0,032 – 0,072]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	54	[1,1 – 181]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible	53	[1,1 – 254]	mBq/kg frais
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Moules	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	220	[155 – 365]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	9,3	[6,4 – 15,9]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	200	[139 – 346]	mBq/kg frais
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale – maximale]	(unité)
Algues	²³⁴ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	1,0	[0,6 – 1,4]	Bq/kg sec
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	14,8	[7,8 – 30]	Bq/kg sec
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			

Matrice	Isotope Uranium	Contexte	Activité moyenne	[activités minimale –maximale]	(unité)
Sédiment marin	²³⁴ U	BDF (Hors influence)	7,0	[3,9 – 11,6]	Bq/kg sec
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁵ U	BDF (Hors influence)	0,34	[0,18 – 0,59]	Bq/kg sec
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁶ U	BDF (Hors influence)			
		Industries du cycle du combustible			
		Proximité sites miniers			
	²³⁸ U	BDF (Hors influence)	6,7	[4,0 – 11,5]	Bq/kg sec
Industries du cycle du combustible					
Proximité sites miniers					

3.4. Références

- [A3-1] IRSN. Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2012.
- [A3-2] P. Lefebvre, P. Le Pape, A. Mangeret, A. Gourgiotis, P. Sabatier, P. Louvat, O. Diez, O. Mathon, M. Y. J. Hunault, C. Baya, L. Darricau, C. Cazala, J. R. Bargar, J. Gaillardet, G. Morin. Uranium(VI) sorption and long-term evolution in a pristine alpine wetland. Submitted to *Geochimica et Cosmochimica Acta*.
- [A3-3] P. Steier, M. Bichler, L.K. Fifield, R. Golser, W. Kutschera, A. Priller, F. Quinto, S. Richter, M. Srnec, P. Terrasi, L. Wacker, A. Wallner, G. Wallner, K.M. Wilcken, E.A. Wild, 2008. Natural and anthropogenic ²³⁶U in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B266, 2246-2250.
- [A3-4] H. Jaegler, A. Gourgiotis, P. Steier, R. Golser, O. Diez, C. Cazala, 2020. Pushing Limits of ICP-MS/MS for the Determination of Ultralow ²³⁶U/²³⁸U Isotope Ratios. *Anal. Chem.*, 92, 7869-7876.
- [A3-5] A. Buchholz, T.A. Brown, T.F. Hamilton, I.D. Hutcheon, A.A. Marchetti, R.E. Martinelli, E.C. Ramon, S.J. Tumej, R.W. Williams, 2007. Investigating uranium isotopic distributions in environmental samples using AMS and MC-ICPMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 259 (1), 733-738.
- [A3-6] G. Ielsch, M. Cuney, F. Buscail, F. Rossi, A. Leon, M.E. Cushing, 2017. Estimation and mapping of uranium content of geological units in France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 166, 210-219.
- [A3-7] IRSN, 2021. Bilan de l'état radiologique de l'environnement français de 2018 à 2020. Rapport N° IRSN/2021-00765.
- [A3-8] P. Lefebvre, A. Gourgiotis, A. Mangeret, P. Sabatier, P. Le Pape, O. Diez, P. Louvat, N. Menguy, P. Merrot, C. Baya, M. Zebracki, P. Blanchart, E. Malet, D. Jézéquel, J.-L. Reyss, J. R. Bargar, J. Gaillardet, C. Cazala, G. Morin, 2021. Diagenetic formation of uranium-silica polymers in lake sediment over 3,300 years. *PNAS*, 118, e2021844118.
- [A3-9] IRSN, 2005. Mode de formation des placers radioactifs et origine des minéraux lourds du littoral de Camargue. Rapport DEI/SESURE n°2005-09.
- [A3-10] IRSN, 2020. Constat radiologique Méditerranée – rapport de mission 2020. Rapport N° IRSN 2020-00895.
- [A3-11] A. Morereau, H. Jaegler, K. Hain, P. Steier, R. Golser, A. Beaumais, H. Lepage, F. Eyrolle, C. Grosbois, C. Cazala, A. Gourgiotis. Deciphering sources of U contamination using isotopic signatures in the Loire River sediments: exploring the relevance of the ²³³U/²³⁶U ratio. Submitted to *Chemosphere*.
- [A3-12] IRSN, 2015. Note d'information sur les accidents ayant affecté les réacteurs nucléaires du site de Saint-Laurent-des-Eaux en 1969 et en 1980.
- [A3-13] A. Vrel, 2012. Reconstitution de l'historique des apports en radionucléides et contaminants métalliques à l'estuaire fluvial de la Seine par l'analyse de leur enregistrement sédimentaire. Thèse Ecole doctorale de l'université de Caen.
- [A3-14] IRSN, 2019. Base de données MIMAUSA : Mémoire et IMpAct des Mines d'Uranium : Synthèse et enregistrements, Juin 2019, <https://mimausabdd.irs.fr/>.
- [A3-15] IRSN, 2017. Fiche N°1 : L'extraction de l'uranium en France : données et chiffres clés. IRSN - Mines d'uranium - Fiche 1 : L'extraction de l'uranium en France : données et chiffres clés.
- [A3-16] L. Stetten, A. Mangeret, J. Brest, M. Seder-Colomina, P. Le Pape, M. Ikogou, N. Zeyen, A. Thouvenot, A. Julien, G. Alcalde, J.L. Reyss, B. Bombled, C. Rabouille, L. Olivi, O. Proux, C. Cazala, G. Morin, 2018.

Geochemical control of on the reduction of U(VI) to mononuclear U(IV) species in lacustrine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 222, 171-186.

- [A3-17] A. Cuvier, F. Panza, L. Pourcelot, B. Foissard, X. Cagnat, J. Prunier, P. van Beek, M. Souhaut, G. Le Roux, 2015. Uranium decay daughters from isolated mines: accumulation and sources. *Journal of Environmental Radioactivity*, 149, 110-120.
- [A3-18] L. Stetten, P. Blanchart, A. Mangeret, P. Lefebvre, P. Le Pape, J. Brest, P. Merrot, A. Julien, O. Proux, S.M. Webb, J.R. Bargar, C. Cazala, G. Morin, 2018. Redox fluctuations and organic complexation govern uranium redistribution from U(IV)-phosphate minerals in a mining-polluted wetland soil, Brittany, France. *Environmental Science and Technology*, 52, 13099-13109.
- [A3-19] A. Martin, Y. Hassan-Loni, A. Fichtner, O. Péron, K. David, P. Chardon, S. Larrue, A. Gourgiotis, S. Sachs, T. Arnold, B. Grambow, T. Stumpf, G. Montavon, 2020. An integrated approach combining soil profile, records and tree ring analysis to identify the origin of environmental contamination in a former uranium mine (Rophin, France). *Science of the Total Environment*, 747, 141295.
- [A3-20] Y. Wang, M. Frutschi, E. Suvorova, V. Phrommavanh, M. Descostes, A.A.A. Osman, G. Geipel, R. Bernier-Latmani, 2013. Mobile uranium(IV)-bearing colloids in a mining-impacted wetland. *Nature Communications*, 4, 2942.
- [A3-21] Y. Wang, A. Bagnoud, E. Suvorova, E. McGivney, L. Chesaux, V. Phrommavanh, M. Descostes, R. Bernier-Latmani, 2014. Geochemical control on uranium(IV) mobility in a mining-impacted wetland. *Environmental Science and Technology*, 48, 10062-10070.
- [A3-22] A. Mangeret, P. Blanchart, G. Alcalde, X. Amet, C. Cazala, M.-O. Gallerand, 2018. An evidence of chemically and physically mediated migration of ²³⁸U and its daughter isotopes in the vicinity of a former uranium mine. *Journal of Environmental Radioactivity*, 195, 67-71.

Annexe 4. Comportement de l'Uranium dans les matrices environnementales

4.1. Transferts dans le milieu terrestre

4.1.1. Teneurs en uranium dans les sols

En Europe, la concentration médiane en uranium des sols est estimée aux environs de 2 mg.kg^{-1} , avec une gamme de variation allant de moins de $0,1$ à plus de 50 mg.kg^{-1} [A4-26]. 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 [A4-43]. 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 mg.g^{-1}) dans des sols granitiques uranifères [A4-50] [A4-51] 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 le jeu de sols analysés et sa représentativité au regard des différents sols français. En l'occurrence, les échantillons de sols sur substrat sédimentaire sont probablement surreprésentés dans le jeu de données considéré. Dans leur compilation de données françaises, [A4-80] indiquent une moyenne de $98 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ (8 mg.kg^{-1}) pour les sols situés 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 mg.kg^{-1}).

4.1.2. Mobilité dans le sol

Présentant plusieurs états d'oxydation, le comportement de l'uranium dans le milieu terrestre est étroitement lié aux conditions d'oxydoréduction du milieu [A4-24][A4-36] et aux caractéristiques bio-physico-chimiques des sols. En milieu oxydant, l'uranium se trouve principalement sous sa valence +VI, qui est une forme plutôt stable et potentiellement mobile. En conditions réductrices il peut être réduit à l'état +IV sous des formes peu solubles et donc peu mobiles (par ex. sous forme d'uraninite (UO_2), Dans ces conditions, différentes phases porteuses d'U(IV) non cristallines ont également été identifiées [A4-11][A4-9][A4-102].

Le degré de mobilité de l'U apporté de façon exogène au sol va dépendre avant tout de sa spéciation au moment où il est introduit dans le sol et des différentes réactions de complexation, sorption-désorption, précipitation-dissolution, ou encore réduction qui vont avoir lieu.

De manière générale, l'uranium a une mobilité moyenne dans les sols. En condition aérobie, l'U(VI) sous forme d'ion uranyle (UO_2^{2+}) se complexe facilement avec la matière organique dissoute, les carbonates, les phosphates et les sulfates ce qui contribue à sa dispersion dans les milieux aqueux. En absence de carbonates, l'ion uranyle et ses complexes s'adsorbent à la surface des oxydes de fer [A4-40][A4-44], de la matière organique solide [A4-20], et dans une moindre mesure à la surface des argiles [A4-25]. Ces différents processus de rétention de l'U(VI) dans les sols limitent sa mobilité. Ils sont toutefois modulés par le pH : la tendance générale dans les sols est une sorption faible à des pH inférieurs à 3, qui augmente rapidement entre pH 3 et 5, atteint un maximum entre pH 5 et 7 et décroît ensuite dans les sols de pH supérieur à 7 [A4-32]. Ces processus de rétention sont également modulés par la présence de ligands complexants, tels que les carbonates (qui réduisent l'adsorption de l'uranium à la surface des minéraux à $\text{pH} > 7$) ou les acides humiques et fulviques (qui forment des complexes organiques solubles avec l'U), et en présence de cations compétiteurs, tels que Ca^{2+} et Mg^{2+} [A4-94]. La mobilité de l'uranium

augmente ainsi dans les sols carbonatés et peu pourvus en matière organique [A4-18] mais reste assez limitée si ces sols sont très riches en matière organique, notamment dans les zones humides [A4-58][A4-102][A4-104].

La réduction d'U(VI) en U(IV) dépend des conditions de pH et de potentiel d'oxydo-réduction (Eh). Ainsi, à pH4 la réduction se produit pour des Eh < 100 mV, alors qu'à pH 8 un Eh négatif est nécessaire [A4-77]. La réduction U(IV)/U(VI) dépend également de la concentration en carbonate et phosphate du milieu ; dont la présence favorise la formation de complexes U(VI)-carbonate/phosphate qui stabilise l'uranium à son degré d'oxydation +VI. A l'opposé, la présence de matière organique dissoute, qui est un donneur d'électron potentiel dans les réactions d'oxydo-réduction, peut favoriser la réduction de l'U(VI) en U(IV) [A4-14].

Enfin, l'uranium dans le sol peut également subir des modifications de sa spéciation du fait d'interactions biogéochimiques (que ce soit par des processus métaboliques directs ou des phénomènes de respirations microbiennes). Parmi ces interactions, un certain nombre conduisent à la diminution de la concentration en U dissous dans les sols. On citera par ex. la bio-sorption de l'U sur la paroi des micro-organismes, la bio-accumulation de l'U à l'intérieur des micro-organismes, la bio-réduction d'U(VI) en U(IV) ou encore la bio-minéralisation qui conduit à la précipitation de l'U dans le milieu du fait des activités microbiennes [A4-71][A4-105].

La spéciation de l'uranium dans le sol détermine donc en grande partie sa mobilité. Aussi pour apprécier sa mobilité, il est nécessaire d'identifier les scénarios qui pourraient amener à une modification de sa spéciation notamment pour les sites présentant de fortes variations hydrogéologiques. Aux Etats-Unis sur le site du « DOE Rifle site », une re-mobilisation de l'U, retenu initialement sous forme d'U(IV) dans la nappe phréatique, causée par les fluctuations du niveau de la nappe et la modification des conditions d'oxygénation du milieu a ainsi été mise en évidence [A4-113]. La présence de carbonates peut également conduire à mobiliser l'U, sous forme +IV ou +VI, et ce quelles que soient le degré d'oxygénation du milieu [A4-90]. A l'inverse, cette remobilisation d'U peut être atténuée par des mécanismes contrôlés par des bactéries, comme l'oxydation du fer [A4-91]. D'autres oxydants comme les nitrates, qui forment des complexes stables dissous avec l'U, sont également connus pour être responsables de niveaux importants en U dissous dans les eaux souterraines ; c'est le cas notamment aux Etats-Unis et en Allemagne [A4-1]; [A4-110]. De même, certaines activités microbiennes peuvent réoxyder l'U(IV).

Dans le cas d'une contamination, il faut noter que les différentes réactions ci-dessus (sorption/réduction-oxydation) ne sont pas toujours instantanées, mais présentent parfois des limitations cinétiques. Ainsi, si une contamination se produit par dépôt de particules uranifères (oxydes d'uranium par ex.), il conviendra dans un premier temps de prendre en compte leur cinétique de dissolution. Cette vitesse de dissolution varie notamment en fonction du degré de cristallinité des minéraux considérés, du pH, du potentiel d'oxydo-réduction, de la composition du sol et avec la pression partielle en CO_{2g} du milieu [A4-108].

Ce sont notamment ces cinétiques (cinétique de sorption à la surface des minéraux, lente oxydation de l'U(IV) en U(VI) par ex.) qui expliquent la persistance d'un panache de contamination en uranium dans certains sites du DOE [A4-113].

Par ailleurs, l'évolution dans le temps des phases sur lesquelles est adsorbé l'U, notamment lorsqu'il s'agit de phases organiques donc dégradables, peut également entraîner sa remobilisation. Les mécanismes responsables de la rétention ou de la migration de l'uranium à court, moyen et long terme peuvent donc différer.

La prise en compte des cinétiques réactionnelles pour comprendre le devenir d'une contamination en U dans le sol et sa mobilité à différentes échelles de temps est à l'heure actuelle que trop peu prise en compte dans les modèles de transfert utilisés en radioécologie alors qu'elle permet d'expliquer certaines observations de terrain (sur les sites du DOE notamment, [A4-53]).

La conséquence de ces différents éléments est que l'uranium « fraîchement » déposé sur un sol peut être plus mobile et biodisponible que l'uranium originellement contenu dans ce sol. Ceci a pu être mis en évidence sur de nombreux sites d'essais militaires ou zones de combat dans le monde entier, y compris en Europe, au

Moyen-Orient et aux États-Unis, où l'utilisation de munitions à l'uranium appauvri (UA) a conduit à une contamination préoccupante des sols. De l'UA a pu ainsi être retrouvé à des grandes distances des points de contamination originels, ce qui suggère que l'UA a été mobilisé et transporté par les eaux de surface et/ou via l'eau du sol. Des auteurs ont montré que lors de ce transport l'UA restait sous une forme échangeable (et donc potentiellement biodisponible) dans les sols [A4-108][A4-73].

Enfin, puisque l'U(VI) et l'U(IV) peuvent s'associer à des colloïdes d'oxyde de fer, d'argiles ou de matières organiques [A4-14] et/ou que la contamination à l'uranium peut avoir lieu sous forme d'oxydes d'U de différentes tailles et formes, une migration d'une partie de l'uranium dans les sols par voie colloïdale n'est pas à négliger [A4-21][A4-37]. La quantification de cette fraction et sa persistance dans le temps reste un enjeu à relever.

4.1.2.1. Valeurs de Kd pour l'uranium

En radioécologie, les modèles utilisés pour prédire le transfert dans les sols repose sur l'utilisation d'un paramètre simple, le coefficient de distribution sol-solution, le Kd. Ce paramètre agrège l'ensemble des réactions conduisant à la rétention de l'élément sur le sol et peut être à l'origine de fortes incertitudes lorsqu'il s'agit d'estimer les risques associés à la présence de cet élément dans les milieux. Ceci est d'autant plus vrai pour l'uranium, où comme nous venons de la voir, ces réactions sont à la fois des réactions d'adsorption (au sens strict du terme) à la surface des minéraux, mais également de réduction et/ou de précipitation.

Aussi, il est particulièrement difficile de prédire des valeurs de Kd en se basant sur les caractéristiques simples de sols. Si certains auteurs ont pu mettre en évidence une relation linéaire entre le pH du sol et le Kd [A4-29][A4-111] pour un nombre de sols et un domaine de pH restreints, ce résultat a été mis en défaut en augmentant le nombre de sols considérés [A4-93] et en suggérant d'inclure d'autres facteurs explicatifs (comme la texture ou la teneur en matière organique par ex [A4-92][A4-84]).

Par ailleurs, du fait des cinétiques dans les réactions de sorption de l'U dans le sol, les valeurs de Kd mesurées sur l'uranium naturellement présent dans les sols sont généralement supérieures à celles mesurées sur des sols artificiellement et récemment contaminés en U [A4-84].

De fait, les valeurs de Kd proposés par l'AIEA [A4-42] et tabulées selon la texture des sols couvrent de 1 à 3 ordres de grandeurs selon la texture du sol (Tableau A4 - 1).

Tableau A4 - 1 : Kd values for U, Th, Ra and Po grouped according to the texture/organic matter criterion (L.kg⁻¹) [A4-42]

Element	Soil Group	N	GM	GSD	Min	Max
U	All soils	178	2.0×10^2	12	7.0×10^{-1}	6.7×10^4
	Mineral	146	1.8×10^2	13	7.0×10^{-1}	6.7×10^4
	Organic	9	1.2×10^3	6.1	3.3×10^2	7.6×10^3

4.1.3. Transferts aux végétaux

4.1.3.1. Voies de transfert

Le transfert d'uranium aux végétaux ne dépend pas de l'isotope, aucune discrimination isotopique significative n'est décrite pour des isotopes aussi lourds. Par contre, l'intensité du transfert est liée à la spéciation et la biodisponibilité de l'U dans les différentes matrices pouvant conduire à une contamination des végétaux soit par la voie foliaire (atmosphère-plante) soit par la voie racinaire (sol-plante). Pour des végétaux cultivés les scénarios

de contamination par l'une et/ou l'autre de ces voies peuvent faire intervenir l'atmosphère, l'eau (en cas d'irrigation par aspersion avec de l'eau contaminée comme lors du rejet accidentel de l'usine SOCATRI), le sol et les engrais phosphatés car ceux-ci peuvent contenir quelques centaines de mg.kg^{-1} d'U en impuretés et sont épandus à raison de plusieurs centaines de kg.ha^{-1} .

a. Transfert par voie foliaire

Si un marquage des végétaux en U par les rejets gazeux et particulaires de certaines installations est constaté [A4-82], la voie foliaire n'a pas été spécifiquement étudiée dans le but de caractériser l'intensité des transferts associés en fonction des différentes formes présentes dans le terme source, et on ne dispose donc pas de valeurs des paramètres radioécologiques (fraction d'interception, facteur de translocation, ...) décrivant cette voie. Obtenir des valeurs de transfert en U par voie foliaire notamment pour des plantes potagères est donc une piste majeure d'amélioration pour une meilleure prise en compte de scénarios conduisant à la contamination directe des parties aériennes, ce quelle que soit la forme chimique concernée. En effet, les valeurs de FT par voie foliaire sont en général largement supérieures à celles par voie racinaire, expliquant la prépondérance de cette voie pour un scénario accidentel.

Pour la voie foliaire, il faut séparer la contamination par voie directe d'un organe de la voie indirecte de contamination par redistribution interne. La contamination par voie directe découle du dépôt sur le feuillage, les tiges ou les fruits de formes particulières (e.g. particules de sol contaminé, particules issues de la pulvérisation d'obus antichar...), et/ou de formes dissoutes ou gazeuses. Elle est caractérisée par la part du dépôt interceptée par les plantes, et par la constante dite de « décroissance biomécanique » qui intègre les processus pouvant faire décroître l'activité dans la plante, tels que le lessivage par les pluies. Si la contamination a lieu de manière précoce avant que l'organe cible soit présent, sa contamination se fera alors par voie indirecte, suite à des processus de translocation interne entre les différents organes du végétal (ex. feuilles → fruit), caractérisée par un facteur de translocation.

Il est probable que comme pour le Pu et plus généralement les éléments transuraniens, le dépôt de particules (sol par resuspension ou autre) contaminées en U sur le feuillage puisse être à l'origine d'une contamination mesurable. Des indices en ce sens ont été acquis à proximité de stockage de résidus type stériles miniers sur des arbres forestiers ([A4-10]; cerne de 2011 des arbres hors aval du site de Rophin, [A4-58]) ou à proximité de certaines installations ([A4-82] et références citées). Sans présager de la biodisponibilité interne de l'U après dépôt, il est évident que les 2 catégories de végétaux les plus concernés sont ceux pour lesquels les organes consommés sont les feuilles (légumes feuilles, fourrages, prairies). Par contre, les données ne permettent pas d'évaluer l'importance absolue de cette voie de transfert, juste dans certains cas estimer sa contribution à l'activité totale du végétal (ex. 20 % d'activité liée à la resuspension de particules contaminées au voisinage de l'installation de Malvésii rejetant de l'UF4 en comparant des mesures en période d'activité vs période d'arrêt où il n'y a plus de rejet direct ; [A4-60]). Le transfert par voie liquide suite à irrigation par aspersion est une situation existante, notamment pour du maraichage à proximité d'anciennes mines d'U ou de stockages de résidus. Comme pour l'eau de rivière, l'impact de la spéciation de l'U dans l'eau, liée aux paramètres physicochimiques de celle-ci (pH, carbonates, ...) pourrait être importante et reste à étudier.

Dans le cas où on ne dispose pas de valeurs spécifiques pour l'U pour un paramètre, on peut à défaut utiliser ceux d'un élément, en général proche chimiquement, dont on estime qu'il pourrait présenter le même type de comportement. Pour ce qui concerne l'interception, on n'a pas de donnée pour l'interception par voie humide ni pour l'interception des formes gazeuses. Pour l'interception par voie sèche, certaines données du TRS pourraient être utilisables car pour ce processus, ce sont la plante (espèce et stade) et la taille des particules qui sont les facteurs les plus importants, pas la composition chimique. Dans le cas de l'U, le Pu est parfois utilisé comme référence possible de comportement dans la bibliographie, notamment pour la resuspension. Pour la translocation, il existe une valeur de Facteur de translocation de $3 \cdot 10^{-4}$ % pour le Pu dans le TRS472, pour le haricot [A4-3]. Cependant, comme il semble que l'U soit plus mobile que le Pu dans l'environnement (ex. valeurs de FT racinaire supérieures pour U), il conviendrait d'acquérir des données propres à l'U ou des données permettant de

valider le comportement de l'U vis-à-vis de celui du Pu. Dans le cas d'un calcul d'impact devant être conservatif, on peut utiliser à défaut les valeurs pour un élément que l'on estime plus mobile, tel que le Sr ou le Cs par exemple.

b. Transfert par voie racinaire

La voie racinaire a été plus étudiée et de nombreuses valeurs de Facteur de Transfert¹² sont disponibles notamment dans le TRS 472 ([A4-3], Tableau A4 - 2). En l'état des connaissances, les données concernent le transfert d'espèces dissoutes de l'U(VI). Si le transfert racinaire de particules de type nano (<80 nm) est rapporté dans la littérature, aucune étude ne concerne l'étude du transfert racinaire de particules porteuses d'U. Les FT racinaires sont éventuellement discriminés par catégorie de sol, les catégories faisant référence en premier lieu à la texture et/ou à la présence d'une quantité significative de matière organique et secondairement au pH. Ils sont également discriminés par classe de végétaux, la classe étant défini par le type d'organe consommé (ex. tubercule, feuilles) ou l'usage qui en est fait (ex. fourrage). Les facteurs de transfert sol-plante moyens tabulés dans le TRS 472 varient entre 5×10^{-3} et 1. Les valeurs de FT sont caractérisées par une grande variabilité (plusieurs ordres de grandeurs) au sein d'une catégorie donnée. Les différentes classes de sol rendent au final peu compte de l'impact des propriétés du sol sur l'intensité du transfert et la variabilité est plus importante au sein d'une classe de végétaux qu'entre végétaux différents. Les valeurs tabulées sont également plus élevées en climat tropical que tempéré (sols, climat, espèces en partie différents).

Des connaissances plus mécanistes ont été produites pour l'U et permettent d'éclairer certains facteurs de variabilité des FT tabulés. L'intensité du transfert est fonction de la spéciation de l'U dans le sol, donc des propriétés physicochimiques de celui-ci car toutes les espèces chimiques dissoutes ne sont pas absorbables par les racines. La biodisponibilité de l'U n'est que partiellement comprise. Si l'ion uranyle est absorbé par les racines, pour d'autres espèces chimiques qui semblent être impliquées (complexes d'uranyle), il reste à montrer si elles sont absorbées directement ou si les complexes jouent un rôle de tampon en uranyle pour alimenter le flux à la plante. Le transfert est fonction du pH, de la teneur en carbonates (expliquant une augmentation de disponibilité sur les sols calcaires), en phosphates (complexes non biodisponibles ou peu solubles), en matière organique par exemple. De manière générale l'U n'est toutefois pas très biodisponible. L'U présente une forte affinité pour les racines et/ou organes en contact direct avec le sol. Par exemple, pour les racines/tubercules, une teneur en U plus élevée jusqu'à un facteur 100 est rapportée [A4-109] mais cela ne semble pas se traduire par des valeurs de FT plus élevées [A4-3]. Dans les parties aériennes, l'U est plus présent dans les tiges et feuilles que dans les fruits et les graines, mais globalement la translocation est faible. L'espèce végétale est un facteur de variation probablement important de transfert de l'U mais l'origine de cette variabilité n'est pas connue ou étudiée. Les bases de données de facteurs de translocation ne tiennent d'ailleurs pas compte des catégories de végétaux puisqu'elles s'intéressent aux types d'organes consommés. On peut donc retrouver dans une même catégorie, des plantes de comportement très différent vis-à-vis de l'absorption/translocation de l'U, ce qui s'ajoute à la catégorisation des types de sol peu pertinente pour évaluer le transfert racinaire de l'U.

Tableau A4 - 2 : Facteurs de transfert racinaire moyens de l'U ($Bq \cdot kg^{-1} \text{végétal sec}$ par $Bq \cdot kg^{-1} \text{sol sec}$, [A4-3])

Céréales (grains)	
Environnement tempéré	$6,2 \cdot 10^{-3}$
Environnement tropical	$1,8 \times 10^{-2}$
Céréales	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	$2,7 \cdot 10^{-2}$
Environnement tropical (plante entière)	$4,6 \cdot 10^{-2}$
Maïs (grain)	
Environnement tempéré	$1,5 \cdot 10^{-2}$

¹² Le FT sol-plante, sans unité, est défini par le rapport d'activité massique ou la concentration ($Bq \cdot kg^{-1} \text{MS}$) dans l'organe végétal considéré à celle du sol ($Bq \cdot kg^{-1} \text{sol sec}$) en considérant la hauteur de l'horizon racinaire, soit 20 cm pour toutes les plantes sauf la prairie (10 cm).

Environnement tropical	8,7 10 ⁻²
Maïs	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	7,8 10 ⁻³
Environnement tropical (plante entière)	9,6 10 ⁻¹
Légumes feuilles (feuilles)	
Environnement tempéré	2,0 10 ⁻²
Environnement tropical	4,8 10 ⁻²
Autres légumes (fruits, bourgeons, baies, têtes)	
Environnement tempéré	1,5 10 ⁻²
Environnement tropical	4,4 10 ⁻²
Autres légumes	
Environnement tempéré	5,3 10 ⁻²
Environnement tropical	6,2 10 ⁻¹
Légumineuses (graines et gousses)	
Environnement tempéré	2,2 10 ⁻³
Environnement tropical	3,8 10 ⁻²
Légumineuses	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	6,4 10 ⁻²
Environnement tropical (plante entière)	8,5 10 ⁻¹
Légumes racines (racines)	
Environnement tempéré	8,4 10 ⁻³
Environnement tropical	4,7 10 ⁻²
Légumes racines (tiges et parties aériennes)	
Environnement tempéré	2,8 10 ⁻²
Environnement tropical	1,7 10 ⁻¹
Tubercules (tubercules)	
Environnement tempéré	5,0 10 ⁻³
Environnement tropical	2,0 10 ⁻²
Tubercules (tiges et parties aériennes)*	1,9 10 ⁻¹
Plantes aromatiques	
Environnement tempéré	3,6 10 ⁻²
Environnement tropical (feuilles)	7,8 10 ⁻³
Environnement tropical (fruits)	4,9 10 ⁻²
Tournesol (feuilles)*	7,1 10 ⁻²
Tournesol (grain)*	1,5 10 ⁻²
Herbes (graminées)	
Environnement tempéré (tige et parties aériennes)	1,7 10 ⁻²
Environnement tropical (plante entière)	6,4 10 ⁻¹
Prairie naturelle (tige et parties aériennes)*	4,6 10 ⁻²
Fourrage (légumineuse ; tige et parties aériennes)*	1,5 10 ⁻²
Riz (environnement non spécifié)	2,4 10 ⁻⁴

*Environnement tempéré

4.1.4. Transferts aux animaux (animaux d'élevage)

Pour les animaux d'élevage, les voies de transfert possibles sont liées à l'ingestion de végétaux, d'eau de boisson, ainsi que de compléments alimentaires phosphatés riche en impuretés dont l'U et de sol/particules contenant de l'U [A4-78]. L'ingestion de végétaux contaminés est considérée comme la voie prépondérante dans la méthodologie du TRS. L'ingestion de particules de sol, même si elle est significative est considérée plus négligeable du fait d'une bioaccessibilité faible (fraction désorbée par les sucs du tractus digestif faible). Les niveaux d'U sont connus pour les produits animaux. Les facteurs de transfert aux produits animaux (Tableau A4 - 3, [A4-3]) varient entre 4×10^{-4} et $4,4 \times 10^{-2} \text{ j.L}^{-1}$ pour le lait de vache et entre $3,9 \times 10^{-4}$ et $7,5 \times 10^{-1} \text{ j.L}^{-1}$ pour la viande de bovin et la volaille respectivement. Ces facteurs de transfert rapportent l'activité dans le lait ou la viande (Bg.kg^{-1}) à l'activité journalière ingérée (Bq.j^{-1}). Les valeurs de ces coefficients sont considérées comme conservatives, car elles surestimeraient le transfert malgré toutes les limites à leur utilisation (biais de taille de l'animal, d'âge de l'animal, de non-équilibre, de variations saisonnières dans les rations...).

Tableau A4 - 3 : Facteurs de transfert moyens de l'U aux produits d'origine animale (j kg^{-1} ou j L^{-1} , [A4-3])

Lait de vache	$1,8 \times 10^{-3}$
Lait de chèvre	$1,4 \times 10^{-3}$
Viande de bœuf	$3,9 \times 10^{-4}$
Viande de porc	$4,4 \times 10^{-2}$
Viande de volailles	$7,5 \times 10^{-1}$
Œufs	$1,0 \times 10^0$

4.2. Teneurs et transferts dans le milieu aquatique continental

4.2.1. Eaux

La concentration en uranium dissous est contrôlée par la forme U(VI) dans les environnements oxydants et les différentes espèces chimiques dépendent du pH, de la dureté et de l'alcalinité [A4-22][A4-35][A4-57]. L'uranium est relativement plus mobile en conditions oxydantes qu'en conditions anoxiques. Le pH détermine la proportion des espèces libre et hydratées. L'ion uranyle UO_2^{2+} est l'espèce dominante dans les eaux de surface en milieu oxydant, jusqu'à pH 6. Dans une gamme de pH comprise entre 5,5 et 8,5, la proportion d'espèce libre et hydratée diminue avec l'augmentation du pH. Au-delà, apparaissent pour des pH supérieurs à 8, les formes carbonatées. Sur le terrain, la variation saisonnière du pH dans la masse d'eau peut fortement influencer la spéciation de l'U [A4-69]. La dureté peut affecter la spéciation de l'U ; lorsque la concentration en Ca et Mg augmente, leurs liaisons avec les ions carbonates augmentent, ce qui diminue la quantité d'U complexée avec les carbonates. Lorsque l'alcalinité augmente, les ions libres s'hydratent ou se complexent avec les ions carbonates et bicarbonates, et peuvent éventuellement précipiter. La spéciation de l'U dans les eaux naturelles de surface est donc complexe. Dans le cas des mines d'uranium, le traitement chimique des effluents consiste à ajouter différents composés chimiques tels que l'oxyde de calcium (CaO), l'hydroxyde de calcium (CaOH), le chlorure de baryum (BaCl_2) et l'acide sulfurique (H_2SO_4), modifiant significativement la spéciation de l'U. La différence de spéciation de l'U entre les eaux naturelles de surface et les eaux recevant les effluents de mines d'U est à prendre en compte pour prédire la toxicité de l'U pour les organismes aquatiques [A4-35].

En plus du pH et du potentiel d'oxydo-réduction, 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 [A4-68]. En rivière, plus de 90 % de l'uranium peut être associé à la fraction colloïdale, constituée soit par des colloïdes de fer, soit par les acides humiques ou les humines. La modélisation de la spéciation de l'U dans la colonne d'eau de 5 sites

(site minier Ranger, Australie) montre que l'U est majoritairement présent (92-98 %) sous formes de complexes U-Acides fulviques (UO₂FA, WHAM, Ver 7.0.5, [A4-62][A4-107]. La fraction colloïdale participe au 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 ‰ [A4-81][A4-6].

Les valeurs de coefficients de distribution de l'U entre l'eau et les matières en suspension (MES) sont compris entre 20 et 1000 Bq.kg⁻¹ de solide sec par Bq.L⁻¹ d'eau avec des valeurs plus élevées en conditions réductrices (Tableau A4 - 4).

Tableau A4 - 4 : Coefficient de distribution eau-MES Kd (Bq.kg⁻¹ de solide sec par Bq.L⁻¹ d'eau) [A4-74][A4-1][A4-3]

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

4.2.2. Sédiments

Comme pour les matières en suspension, la rétention de l'uranium par les sédiments est d'autant plus faible que les conditions sont oxydantes et alcalines [A4-13]. Dans ces conditions de pH-E_H, 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). De même la présence d'ions Ca²⁺ en milieu carbonaté va diminuer l'adsorption de l'uranium, en formant des complexes stables solubles d'uranyle (Ca₂UO₂(CO₃)₃(aq) par ex.)

Les ions uranyles de charge positive peuvent s'adsorber sur les surfaces des minéraux ou de la matière organique conduisant à l'accumulation de l'U dans les sédiments. La complexation de surface de l'U(VI) avec l'hématite, la goethite, la ferrihydrite, le quartz, la clinoptilite et la gibbsite sont bien connues [A4-29]. Des conditions chimiques particulières (concentrations élevées en phosphates par exemple) peuvent entraîner la précipitation des ions uranyles et donc leur transfert vers le compartiment sédimentaire. Enfin, en milieu réducteur, l'U(+VI) soluble aura tendance à être réduit en U(+IV) sous des formes insolubles.

A contrario, la bioturbation des sédiments par les activités des macro-invertébrés benthiques participe, quant à elle, à la remobilisation de l'U présent dans le sédiment vers la colonne d'eau.

L'accumulation dans les sédiments peut avoir ensuite des conséquences en termes d'exposition et de transferts vers les organismes benthiques [A4-5][A4-28][A4-48][A4-49][A4-52][A4-102][A4-106].

En lien avec les connaissances sur la toxicité de l'U pour les organismes aquatiques (cf. ci-dessous), des valeurs de concentration maximale d'U dans les sédiments en vue de protéger l'environnement ont été établies selon différentes méthodologies. Elles varient de 100 mg(U).kg⁻¹ masse sèche [A4-62][A4-89] à 4 mg(U).kg⁻¹ masse sèche [A4-102]. Il convient de poursuivre cet axe de recherche pour identifier les paramètres gouvernant la toxicité de l'U présent dans les sédiments.

Comme pour les organismes terrestres, la biodisponibilité pour les organismes aquatiques est contrôlée par la spéciation de l'U (cf. paragraphes ci-dessous sur le transfert aux végétaux et animaux). Celle-ci va donc varier fortement selon les conditions physico-chimiques du milieu, que ce soit dans la colonne d'eau ou dans la matrice sédimentaire [A4-22][A4-23].

4.2.3. Végétaux

Les transferts aux végétaux aquatiques ont été très peu étudiés. Néanmoins, les travaux réalisés sur l'algue *Chlamydomonas reinhardtii* montre que l'accumulation de l'uranium diminue avec l'augmentation des concentrations de calcium, magnésium, phosphate et ligands organiques dans l'eau et est pH-dépendante [A4-32]. Une fois internalisé, l'uranium présente une haute affinité pour les protéines et les lipides au pH intracellulaire, limitant la réversibilité des processus d'absorption. 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*) [A4-83]. De plus l'adsorption d'U à la surface des cellules peut être importante en fonction des espèces et participer au transfert de l'U le long des réseaux trophiques.

Peu de données existent dans la littérature relative à la contamination des macrophytes, bien que leur rôle dans la chaîne alimentaire soit important. L'adsorption d'U par les végétaux aquatiques est testée pour évaluer leur capacité à remobiliser et éliminer l'U de la colonne d'eau [A4-26]. Diverses revues bibliographiques donnent des valeurs de facteurs de concentrations (poids frais) de 4 à 2900 pour les plantes en général. Ainsi, [A4-78] indique que le facteur de transfert le plus élevée est mesuré chez une espèce de macrophytes, la myriophylle [A4-78]. Plus récemment, de Araujo montre que le macrophyte *Azolla sp* (fougère aquatique de surface) présente une cinétique d'internalisation très nettement supérieure (0.474 mmol/g) à celle de *L. laevigatum* (0.026 mmol/g).

La Tableau A4 - 5 ci-dessous résume les valeurs de facteurs de concentration dans les végétaux aquatiques existantes à l'heure actuelle.

Tableau A4 - 5 : Facteur de concentration dans les végétaux (Bq.kg⁻¹ de végétal frais par Bq.L⁻¹ d'eau) [A4-83][A4-3]

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

4.2.4. Animaux

Dans les eaux oxygénées de surface, l'U est présent sous la forme VI, qui est plus biodisponible et toxique que les ions IV [A4-88]. L'ion uranyle UO₂²⁺ est suspecté d'être l'espèce chimique responsable de la toxicité de l'U [A4-23][A4-64].

Bien que la présence de Ca et Mg dans l'eau soit supposée diminuer la biodisponibilité de l'U (du fait de compétition entre UO₂²⁺ et Ca²⁺/Mg²⁺ pour leur prise en charge par les organismes vivants, ou dans les eaux carbonatés du fait de la formation des complexes ternaires Ca/Mg – U- carbonates peu biodisponibles), une étude menée par [A4-35] montre que la toxicité de l'U chez les organismes aquatiques n'est pas directement liée à la dureté (présence ions Ca et Mg) mais dépend principalement de l'alcalinité (présence d'ion carbonates et bicarbonates) et du pH. Ce travail a fourni des données d'écotoxicité pour 6 espèces aquatiques confirmant une différence de sensibilité liée à l'espèce allant de la plus sensible à la moins sensible (*H. azteca*, *C. dubia*, *P. subcapitata*, *O. mykiss*, *P. promelas* et *L. minor*).

Une étude récente menée par [A4-88] montre que chez la daphnie, le facteur de bioconcentration varie entre 1641 et 5204 L.kg⁻¹, valeur supérieure à celles mesurées chez *H. azteca* (240-740 L.kg⁻¹), le poisson *D. rerio* (92-1030 L.kg⁻¹) et le requin *P. sutchi* (0.15-1.32 L.kg⁻¹). Cette étude sur la daphnie montre que l'entrée de l'U dépend du temps et de la dose ($k_u = 1.2 - 3.8 \text{ L.g}^{-1}.\text{j}^{-1}$) alors que le taux de dépuración est constant ($k_e = 0.75 \text{ j}^{-1}$).

La toxicité de l'U chez *C. dubia* induite par l'espèce UO_2^{2+} est généralement réduite par la présence de carbone organique dissout (COD) dans les écosystèmes naturels (COD < 4 mg/L et alcalinité de 56 mg/L $CaCO_3$). Par conséquent, la variabilité saisonnière des complexes U-DOC modifie la toxicité de l'U. Les auteurs insistent sur l'importance de prendre en compte la spéciation dans la détermination de valeurs de protection de l'environnement [A4-70].

In situ (site minier Ranger, Australie), lorsque l'U est principalement fixé sur les ions hydroxyde UO_2OH^+ et carbonate (WHAM, ver 6.01.13), la toxicité de l'U (Inhibition de la reproduction, EC50) chez l'escargot *A. cumingi* n'est pas influencée par la durée de l'exposition (4 jours versus 14 jours). En revanche, cette réponse toxique peut être attribuée principalement par l'espèce UO_2^{2+} [A4-64].

Chez les organismes animaux (crustacés, mollusques, poissons), le facteur de concentration à partir de l'eau reste très faible (Tableau A4 - 6). 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 1700. 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 [A4-19][A4-99][A4-97][A4-100]. La gamme pour le facteur de concentration des muscles s'étend de 1,55 à 24,3 ($L.kg^{-1}$ frais) contre 200 à 8 000 pour les tissus osseux [A4-17]. Les valeurs de transferts direct (par la colonne d'eau) et alimentaire de l'uranium ne mettent pas en évidence de phénomène de bioamplification [A4-78]. Les facteurs de concentration à partir du sédiment sont donnés Tableau A4 - 7 pour les invertébrés.

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 [A4-86]. 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 [A4-95].

Chez le poisson, 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.

Profitant des capacités de séquestration de l'U par des carbonates de calcium, une étude menée par [A4-69] a suivi les concentrations dans les otolithes de poissons (*R. rutilus*) prélevés in situ ou exposés au laboratoire. L'uranium a bien été détecté dans les otolithes, permettant de proposer cet organe comme un marqueur de contamination.

Tableau A4 - 6 : Facteur de concentration dans les animaux ($Bq.kg^{-1}$ d'animal frais par $Bq.L^{-1}$ d'eau) [A4-44][A4-47][A4-86][A4-95][A4-3]

Invertébrés	$1,7 \times 10^2$
Chironome, éphémère	$5,0 \times 10^2$
Daphnies	$4,8 \times 10^1$
Bivalve	
Corbicula fluminea	$1,6 \times 10^2$
Anodonte	$1,8 \times 10^2$
Vertébrés	
Poissons	
organisme entier	2,4
muscle	$9,6 \times 10^{-1}$

Échelle comparative

Tableau A4 - 7 : Facteur de concentration dans les animaux ($Bq.kg^{-1}$ d'animal frais par $Bq.kg^{-1}$ de sédiment) [A4-3]

Invertébrés	$1,7 \times 10^{-2}$
--------------------	--

Échelle comparative

La détermination des voies de transfert (direct/colonne d'eau *versus* trophique/alimentation) a été abordée par quelques études réalisées sur le terrain ou au laboratoire. Concernant la voie trophique, les niveaux d'accumulation dans les producteurs et les consommateurs augmentent linéairement le long d'un gradient de contamination [A4-12]. Selon ces auteurs, U n'est pas biomagnifié le long du réseau trophique. Au laboratoire et sur le terrain, les concentrations en U accumulées dans le tube digestif ou le contenu stomacal de poisson (*D. rerio* et *R. rutilus*) sont élevées, voire très élevées, selon les saisons, ce qui indique que la voie trophique n'est pas à négliger dans les transferts de l'U aux poissons [A4-100][A4-101]. Le Tableau A4 - 8 ci-dessous résume les valeurs de facteurs de transfert trophique connues à l'heure actuelle.

Les études de transferts et de toxicité de l'U se concentrent principalement sur la détermination des facteurs contrôlant la spéciation. Cependant, peu de données concernent l'impact des fractions particulières sur les transferts, la biodisponibilité et la toxicité de l'U.

Tableau A4 - 8 : Facteur de transfert trophique ($Bq.kg^{-1}$ de prédateur frais par $Bq.kg^{-1}$ de proie fraîche) [A4-96][A4-97]

Invertébrés	
Écrevisse (<i>Orconectes limosus</i>) / Bivalve (<i>Corbicula fluminea</i>)	$3,0 \times 10^{-2}$ à $2,2 \times 10^{-1}$
Vertébrés	
Poissons (<i>Danio rerio</i>)/aliment artificiel	$1,3 \times 10^{-3}$ à $5,2 \times 10^{-3}$

4.3. Transferts dans le milieu aquatique marin

4.3.1. 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_2^{2+} [uranium (VI)]. La fraction colloïdale de l'U arrivant à l'océan étant minoritaire, puisque moins de 5 % de l'U est associé à cette fraction pour une salinité de l'ordre de 3 ‰ (cf §.4.2.1). L'U dans les eaux marines est peu réactif vis-à-vis des particules sédimentaires de sorte que son temps de résidence dans l'océan (2 à 4 x10⁵ ans [A4-46][A4-14]) dépasse de beaucoup le temps de mélange de l'océan lui-même (ca 103 ans).

Dans l'eau de mer oxygène (pH~8), U a un comportement conservatif et existe principalement (80 à 90 %) sous forme de complexe triscarbonato calcique d'uranyle, stable, soluble, neutre $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ [A4-29][A4-54]. Des mesures répétées montrent que la teneur en uranium varie linéairement avec la salinité [A4-75]. Ainsi, les mesures de la salinité fournissent des estimations précises, rapides et aisées de l'uranium dans les systèmes marins hauturiers. Sa concentration, relativement homogène dans l'ensemble des bassins océaniques, est de l'ordre de 3 $\mu\text{g.L}^{-1}$, soit 37 mBq.L^{-1} (comprise entre 2,8 et 3,8 $\mu\text{g.L}^{-1}$).

Dans la zone euphotique, où une concentration relativement élevée de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) est trouvée, U montre une forte affinité de liaison pour le ligand peroxyde, formant des proportions mineures (10 à 20 %) du complexe mixte de peroxyde d'hydrogène dicarbonate d'uranyle, $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2(\text{HO}_2)^{3-}$ [A4-56]. La zone euphotique est également relativement riche en matière organique dissoute, où l'uranyle se complexifie avec les substances humiques [A4-67] et peuvent former une composante faible mais significative (<20 %) de la concentration d'U dissous [A4-55]. Dans les eaux anoxiques, U(IV) forme des mélanges polymériques insolubles, qui se déposent sur le fond marin.

4.3.2. Eaux estuariennes

L'uranium dissous a également un comportement conservatif dans de nombreux estuaires : sa concentration évolue en réponse au mélange eau douce – eau de mer, habituellement tracé par la salinité. Cependant, il peut également se comporter de manière non conservative, comme dans les estuaires par exemple du Gange-Brahmapoutre, de la Delaware et de Chesapeake où il est entraîné par les particules en suspension vers le sédiment [A4-87][A4-112] du fait notamment 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. À l'inverse dans certains estuaires comme l'Amazone, de l'uranium est ajouté à la colonne d'eau en lien avec un apport d'uranium via les sédiments [A4-65].

4.3.3. Sédiments

Malgré les apports fluviaux continus, l'océan présente des concentrations stables en uranium, qui est dû à un piégeage de l'uranium dans les sédiments. Les mécanismes de piégeage les plus efficaces [A4-76] sont rencontrés dans les sédiments riches en matière organique dans lesquels les espèces U(VI) oxydées solubles sont réduites en espèces U(IV) insolubles. À noter que 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 [A4-61] ou dissolution des phases porteuses [A4-7]. Néanmoins le bilan global est en faveur d'un piégeage sédimentaire. Des taux d'élimination importants de l'uranium dissous sont également observés au niveau des systèmes hydrothermaux des rides océaniques [A4-66].

4.3.4. Organismes

La biodisponibilité de l'uranium (U) (c'est-à-dire sa capacité à se lier ou à traverser la surface cellulaire d'un organisme) dépend de sa spéciation ou de sa forme physicochimique. U n'a pas de rôle essentiel connu chez les organismes mais il aurait un comportement analogue au Ca, qui lui est un élément essentiel. En milieu marin

comme dans les milieux terrestre ou aquatique continental, plusieurs études ont montré que la biodisponibilité de l'uranyle diminue lorsqu'il est lié à certains ligands inorganiques (par exemple, phosphate, carbonate) ou adsorbé sur des matières colloïdales et particulaires [A4-56].

4.3.5. 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 [A4-39] pour le phytoplancton marin. Cette valeur est proche de celle mesurée in situ chez les diatomées du Pacifique nord-ouest (213 ; [A4-63]). Sur les mêmes périodes, d'autres auteurs préconisent des valeurs inférieures d'un ordre de grandeur : 10 pour [A4-16] et 20 pour l'AIEA [A4-1]. Le phytoplancton regroupe une grande diversité d'espèces de formes différentes, certainement à l'origine de cette grande variabilité.

Chez les macroalgues marines, une dispersion similaire des valeurs de facteurs de concentration est observée, entre 100 [A4-1][A4-34] ou 120 [A4-39] et 700 [A4-38][A4-72]. La bioconcentration de l'uranium apparaît en fait variable selon le type de macroalgues. [A4-63] ont ainsi mesuré des facteurs de concentration de 61, 79 et 248 respectivement pour les rhodophycées, les chlorophycées et les phaeophycées. Enfin, un facteur de concentration de l'uranium de 350 a été mesuré chez la phanérogame marine *Heterozostera tasmanica* par Ahsanullah et Williams [A4-4].

4.3.6. Animaux

Comme pour les végétaux, des facteurs de concentration variés sont rapportés pour le zooplancton marin, de 5 [A4-16] à 71 [A4-63]. Selon certaines sources [A4-34][A4-1][A4-41], les poissons ne concentreraient pas l'uranium quand d'autres auteurs [A4-39] 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 [A4-34][A4-1][A4-41]. De même pour les mollusques (hors céphalopodes), un facteur de concentration de 30 est cité [A4-34][A4-1][A4-41][A4-39]. Il y a très peu d'études sur la spéciation de l'uranium chez les organismes marins, probablement en raison de la très faible concentration de cet élément dans l'eau de mer. Récemment, Reeves et al. [A4-85] ont identifié deux formes différentes d'uranium dans l'oursin, l'une dans la carapace, sous la forme d'un complexe carbonato-calcique, et la seconde dans les gonades et le tractus intestinal, sous la forme d'un complexe protéique.

Remarque : dans les expérimentations l'uranium est introduit sous forme dissoute et aucun suivi de sa spéciation après son introduction dans l'eau de mer n'est réalisé.

Paramètres radioécologiques usuels : milieu marin

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

Sédiments côtiers ⁽¹⁾	1×10^3
Sédiments océaniques profonds ⁽²⁾	5×10^2
Sédiments des marges océaniques ⁽²⁾	1×10^3

(¹ GRNC, 1999 ; ² AIEA, 2004)

Échelle comparative

Facteur de concentration ($Bq.kg^{-1}$ de végétal frais par $Bq.L^{-1}$ d'eau)

Phytoplancton	2×10^1
Macro-algues ^(1,2)	1×10^1

(¹ AIEA, 2004 ; ² GRNC, 1999)

Échelle comparative

Facteur de concentration ($Bq.kg^{-1}$ d'animal frais par $Bq.L^{-1}$ d'eau)

Crustacés ^(1,2)	1×10^1
Mollusques ⁽¹⁾	3×10^1
Mollusques (hors céphalopodes) ⁽²⁾	3×10^1
Zooplancton ⁽²⁾	3×10^1
Poissons ^(1,2)	1×10^0

(¹ GRNC, 1999 ; ² AIEA, 2004)

Échelles comparatives

4.4. Références bibliographiques

- [A4-1] AIEA 1994. Handbook of parameter values for radionuclide transfers in temperate environment. Technical report series, Vienne, Autriche.
- [A4-2] AIEA (2004) Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment – Technical Reports Series n° 422. Vienna, Austria.
- [A4-3] AIEA (Agence Internationale de l'Énergie atomique) 2010. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. -0-113009-9 Technical Reports Series No. 472.
- [A4-4] Ahsanullah M, Williams AR (1986). Effect of uranium on growth and reproduction of the amphipod. *Alochrestes compressa*. *Marine Biology*, 93: 459–464.
- [A4-5] Alves, L.C., Borgmann, U., Dixon, D.G., 2008. Water-sediment interactions for *Hyalella azteca* exposed to uranium-spiked sediment. *Aquatic Toxicology* 87, 187-199.
- [A4-6] Andersson P.S., Porcelli D., Gustafsson O., Ingri J., Wasserburg G.J. 1998. Colloid and particle transport of U isotopes in the low salinity zone of a stable estuary. *Mineral. Mag.* 62A: 57-58.
- [A4-7] Barnes CE, Cochran JK (1993). Uranium geochemistry in estuarine sediments: Controls on removal and release processes. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57: 555–569.
- [A4-8] Banning A., Demmel T., Rude T. R., Wrobel M. 2013. Groundwater uranium origin and fate control in a river valley aquifer. *Environ. Sci. Technol.* 47: 13941-13948.
- [A4-9] Bargar J.R., Williams K.H., Campbell K.M., Long P.E., Stubbs J.E., Suvorova E.I., Lezama- Pacheco J.S., Alessi D.S., Stylo, M., Webb S.M., Davis J.A., Giammar D.E., Blue L.Y., Bernier-Latmani R. 2013. Uranium redox transition pathways in acetate-amended sediments. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 110 : 4506 - 4511.

- [A4-10] Bellis D., Ma R., Bramall N., McLeod C.W., Chapman N., Satake K. 2001. Airborne uranium contamination – as revealed through elemental and isotopic analysis of tree bark. *Environ. Pollut.*, 114 : 383-387.
- [A4-11] Bernier-Latmani, R., Veeramani, H., Vecchia, E.D., Junier, P., Lezama-Pacheco, J.S., Suvorova, E.I., Sharp, J.O., Wigginton, N.S., Bargar, J.R. 2010. Non-uraninite products of microbial U(VI) reduction. *Environ. Sci. Technol.* 44 : 9456–9462.
- [A4-12] Bergmann, M., Graça, M.A.S., 2020. Bioaccumulation and Dispersion of Uranium by Freshwater Organisms. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 78, 254-266.
- [A4-13] Bird G.A., Evenden W.G. 1996. Transfer of ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ⁹⁵Tc, ¹³⁴Cs and ²³⁸U from water to organic sediment. *Water, Air, Soil Pollut*, 86: 251-61.
- [A4-14] Chen JH, Laurence ER (1986). ²³⁸U, ²³⁴U and ²³²Th in seawater. *Earth and Planetary Sciences Letters*, 80 (3-4): 241-251.
- [A4-15] Chen L., Liu J., Zhang W., Zhou J., Luo D., Li Z. 2021 Uranium (U) source, speciation, uptake, toxicity and bioremediation strategies in soil-plant system: A review. *J. Hazard. Mat.* 413 : 125319.
- [A4-16] Cherry RD, Shannon LV (1974) Alpha radioactivity of marine organisms. *Atomic Energy Review*, 12: 3–45.
- [A4-17] Clulow F.V., Davé N.K., Lim T.P., 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. Pol.* 99 : 199-213.
- [A4-18] Colle C., Garnier-Laplace J., Roussel-Debet S., Adam C., Baudin J.-P. 2001. Chapitre 6. Comportement de l'uranium dans les sols in « L'Uranium de l'environnement à l'homme ». H. Métivier coord., Coll. IRSN, EDP Sciences.
- [A4-19] Cooley M., Klaverkamp J.F. 2000. Accumulation and distribution of dietary uranium in lake whitefish (*Coregonus clupeaformis*), *Aquatic Tox.* 48: 477-494.
- [A4-20] Crançon P., Van Der Lee J. 2003. Speciation and mobility of uranium (VI) in humic- containing soils. *Radiochim. Acta* 91: 673 – 679.
- [A4-21] Crançon P., Pili E., Charlet L. 2010. Uranium facilitated transport by water-dispersible colloids in field and soil columns. *Sci Total Environ* 408 :2118 – 2128.
- [A4-22] Crawford, S.E., Lofts, S., Liber, K., 2017. The role of sediment properties and solution pH in the adsorption of uranium(VI) to freshwater sediments. *Environmental Pollution* 220, 873-881.
- [A4-23] Crawford, S.E., Lofts, S., Liber, K., 2018. Predicting the bioavailability of sediment-bound uranium to the freshwater midge (*Chironomus dilutus*) using physicochemical properties. *Environmental Toxicology and Chemistry* 37, 1146-1157.
- [A4-24] Cuney M., Leroy J., Pagel M. 1992. L'uranium, collection « Que sais-je ? » Presses Universitaires de France.
- [A4-25] Davis J.A., Meece D.E., Kohler M., Curtis G.P. 2004. Approaches to surface complexation modeling of uranium(VI) adsorption on aquifer sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* 68 : 3621 – 3641.
- [A4-26] De Araujo L.G., Vieira L.C., Caneves, R.L.S., da Silva E.A., Watanabe T., de Padua Ferreira R.V., Marumo J.T. 2022. Biosorption of uranium from aqueous solutions by *Azolla sp.* and *Limnobium laevigatum*. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 29 : 45221–45229
- [A4-27] De Vos W., Tarvainen T. 2006. Geochemical Atlas of Europe. Part 2 – Interpretation of Geochemical Maps, Additional tables, Figures, Maps and Related Publications (<http://weppi.gtk.fi/publ/foregsatlas/part2.php>)
- [A4-28] Dias, V., Vasseur, C., Bonzom, J.M., 2008. Exposure of *Chironomus riparius* larvae to uranium: Effects on survival, development time, growth, and mouthpart deformities. *Chemosphere* 71, 574-581.

- [A4-29] Dong W., Ball W.P., Liu C., Wang Z., Stone A.T., Bai J., Zachara J.M. 2005. Influence of calcite and dissolved calcium on uranium(VI) sorption to a Hanford subsurface sediment. *Environ. Sci. Technol.* 39: 7949–7955.
- [A4-30] Echevarria G., Sheppard M., Morel J.L. 2001. Effect of pH on the sorption of uranium in soils. *J. Environ. Radioactiv.* 53 : 257 – 264.
- [A4-31] Endrizzi, F. and Rao, L., Chemical Speciation of Uranium(VI) in Marine Environments: Complexation of Calcium and Magnesium Ions with [(UO₂)(CO₃)₃]⁴⁻ and the Effect on the Extraction of Uranium from Seawater. *Chemistry – A European Journal*, 2014. 20(44): p. 14499- 14506.
- [A4-32] EPA 1999. Understanding Variation in Partition Coefficient, K_d, Values. Volume II: Review of Geochemistry and Available K_d Values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium (3H), and Uranium, U. S. Environmental Protection Agency, USA. EPA 402-R-99-004B
- [A4-33] Fortin C, Denison FH, Garnier-Laplace J (2007). Metal-phytoplankton interactions: modelling the effects of competing ions (H⁺, Ca²⁺, Mg²⁺) uranium uptake. *Envir Toxicol Chem*, 26: 242-248
- [A4-34] GRNC – Groupe Radioécologique Nord Cotentin (1999) Modélisation du transfert des radionucléides dans l’environnement – Rapport final, volume 3. IRSN, Fontenay aux Roses.
- [A4-35] Goulet, R.R., Thompson, P.A., Serben, K.C., Eickhoff, C.V., 2015. Impact of environmentally based chemical hardness on uranium speciation and toxicity in six aquatic species. *Environmental Toxicology and Chemistry* 34, 562-574.
- [A4-36] 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.
- [A4-37] Harguindeguy S., Crançon P., Potin Gautier M., Pointurier F., Lespes G. 2019. Colloidal mobilization from soil and transport of uranium in (sub)-surface waters. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 26 :5294 –5304.
- [A4-38] Holm E, Persson RBR (1980) Behavior of natural (Th, U) and artificial (Pu, Am) actinides in coastal waters. *Marine Radioecology – Proceedings of the 3rd NEA seminar, Tokyo, 1979.* OECD, Paris. series 3, RWMC-94-P-15, 97 p.
- [A4-39] Hosseini A Thørring H, Brown JE, Saxén R, Ilus E (2008). Transfer of radionuclides in aquatic ecosystems – Default concentration ratios for aquatic biota in the ERICA Tool. *J Environ Radioactiv* 99: 1408-1429
- [A4-40] Hsi C.D., Langmuir D., 1985. Adsorption of uranyl onto ferric oxyhydroxides: application of the surface complexation site-binding model. *Geochim. Cosmochim. Acta* 49 : 1931 – 1941.
- [A4-41] INERIS – Institut National de l’Environnement Industriel et des Risques (2022) Fiche de données toxicologiques et environnementales – Uranium (disponible sur <http://www.ineris.fr/substances/fr/substance/1887>, page consultée le 13/06/2022).
- [A4-42] IAEA 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical report series n° 472, Vienne, Autriche
- [A4-43] 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 (http://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/Documents/environnement/IRSN_surveillance_France_2009.pdf)
- [A4-44] 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.*
- [A4-45] Koch-Steindl H., Pröhl G. 2001. Considerations on the behaviour of long-lived radionuclides in the soil. *Radiat. Environ. Biophys.* 40 : 93 – 104.

- [A4-46] Ku TL, Knauss KG, Mathieu GG (1977). Uranium in open oceans: Concentrations and isotopic composition. *Deep Sea Res.*, 24: 1005-1017.
- [A4-47] Labrot F., Narbonne J.F., 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.
- [A4-48] Lagauzère, S., Pischedda, L., Cuny, P., Gilbert, F., Stora, G., Bonzom, J.M., 2009a. Influence of *Chironomus riparius* (Diptera, Chironomidae) and *Tubifex tubifex* (Annelida, Oligochaeta) on oxygen uptake by sediments. Consequences of uranium contamination. *Environmental Pollution* 157, 1234-1242.
- [A4-49] Lagauzère, S., Terrail, R., Bonzom, J.M., 2009b. Ecotoxicity of uranium to *Tubifex tubifex* worms (Annelida, Clitellata, Tubificidae) exposed to contaminated sediment. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 72, 527-537.
- [A4-50] Lefebvre P., Gourgiotis A., Mangeret A., Sabatier P., Le Pape P., Diez O., Louvat P., Menguy N., Merrot P., Baya C., Zebracki M., Blanchart P., Malet E., Jézéquel D., Reyss J.-L., Bargar J. R., Gaillardet J., Cazala C., Morin G. 2021. Diagenetic formation of uranium-silica polymers in lake sediment over 3,300 years. *PNAS* 118 : e2021844118.
- [A4-51] Le Roux G. 2007. Radionucléides naturels en France. Approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (40K et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux. IRSN/DEI, rapport SESURE/2007-21, 45 p.
- [A4-52] Liber, K., Doig, L.E., White-Sobey, S.L., 2011. Toxicity of uranium, molybdenum, nickel, and arsenic to *Hyalella azteca* and *Chironomus dilutus* in water-only and spiked-sediment toxicity tests. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 74, 1171-1179.
- [A4-53] Ma R., Zheng C., Liu C., Greskowiak J., Prommer H., Zachara J.M. 2014. Assessment of controlling processes for field-scale uranium reactive transport under highly transient flow conditions, *Water Resour. Res.* 50: 1006 – 1024.
- [A4-54] Maloubier M., Solari PL, Moisy Ph., Monfort M., Den Auwera Ch. et Christophe Moulin Ch. XAS and TRLIF spectroscopy of uranium and neptunium in seawater. *Dalton Trans.*, 2015, 44, 5417. DOI: 10.1039/c4dt03547j
- [A4-55] Mann DK, Wong GTF (1993) "Strongly bound" uranium in marine waters: Occurrence and analytical problems. *Mar Chem*, 42: 25–37.
- [A4-56] Markich, S. J. Uranium Speciation and Bioavailability in Aquatic Systems: An Overview. *Sci. World J.* 2002, 2, 707–729.
- [A4-57] Markich, S.J., 2002. Uranium speciation and bioavailability in aquatic systems: an overview. *The Scientific World Journal* 2, 707-729.
- [A4-58] Martin A., Hassan-Loni Y., Fichtner A., Péron O., David K., Chardon P., Larrue S., Gourgiotis A., Sachs S., Arnold T., Grambow B., Stumpf T., Montavon G. 2020. An integrated approach combining soil profile, records and tree ring analysis to identify the origin of environmental contamination in a former uranium mine (Rophin, France). *Sci. Tot. Environ.* 747 : 141295.
- [A4-59] Martin A., Hassan-Loni Y., Fichtner A., Péron O., David K., Chardon P., Larrue S., Gourgiotis A., Sachs S., Arnold T., Grambow B., Stumpf T., Montavon G. 2020. An integrated approach combining soil profile, records and tree ring analysis to identify the origin of environmental contamination in a former uranium mine (Rophin, France). *Sci. Tot. Environ.*, 747 : 141295.
- [A4-60] Masson O., Pourcelot L., Boulet B., Cagnat X., Videau V., 2015. Environmental consequences of uranium atmospheric releases from fuel cycle facility: I airborne ^{230}Th , ^{232}Th , ^{235}U and ^{238}U levels, 1.1 km from the main stack of a UF4 facility e role of wind resuspension vs. stack releases. *J. Environ. Radioact.*, 141 : 146-152.

- [A4-61] 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.
- [A4-62] McMaster, S.A., Noller, B.N., Humphrey, C.L., Trenfield, M.A., Harford, A.J., 2021. Speciation and partitioning of uranium in waterbodies near Ranger Uranium Mine. *Environmental Chemistry* 18, 12-19.
- [A4-63] 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.
- [A4-64] Mooney, T.J., Harford, A.J., Trenfield, M.A., Pease, C.J., Hogan, A.C., van Dam, R.A., 2016. Increasing uranium exposure durations to the aquatic snail *Amerianna cumingi* does not result in lower toxicity estimates. *Environmental toxicology and chemistry* 35, 2851-2858.
- [A4-65] Moore, W.S. (1992) Radionuclides of the uranium and thorium decay series in the estuarine environment. In *Uranium Series Disequilibrium: Applications to Environmental Problems*. 2nd ed. Ivanovich, M. and Harmon, R.S., Eds. Clarendon Press, Oxford. pp. 396-422
- [A4-66] Morris K., Raiswell R., Biogeochemical cycles and remobilisation of the actinide elements. In : *Interactions of microorganisms with radionuclides*. Miranda J. Keith-Roach and Francis R. Livens (Editors), 101-141.
- [A4-67] Moulin, V. et Moulin, C., Fate of actinides in the presence of humic substances under conditions relevant to nuclear waste disposal. *Applied Geochemistry*, 1995. 10(5): p. 573-580
- [A4-68] Moulin V., Tits J., Ouzounian G. 1992. Actinide speciation in the presence of humic substances in natural water conditions. *Radiochim. Acta* 58/59: 179
- [A4-69] Mounicou, S., Frelon, S., Le Guernic, A., Eb-Levadoux, Y., Camilleri, V., Février, L., Simon, O., 2019. Use of fish otoliths as a temporal biomarker of field uranium exposure. *Science of the Total Environment* 690, 511-521.
- [A4-70] Muscatello, J., Flather, D., Gjertsen, J., 2020. Survival and Reproductive Effects in the Aquatic Invertebrate *Ceriodaphnia dubia* Exposed to Uranium Spiked Site Water Collected from Two Creeks in the Yukon, Canada. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 79, 80-88.
- [A4-71] Newsome L., Morris K., Lloyd J.R. 2014. The biogeochemistry and bioremediation of uranium and other priority radionuclides. *Chem. Geol.* 363 : 164 – 184.
- [A4-72] 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*.
- [A4-73] Oliver I.W., Graham M.C., MacKenzie A.B., Ellam R.M., Farmer J.G. 2008. Depleted uranium mobility across a weapons testing site: Isotopic investigation of porewater, earthworms, and soils. *Environ. Sci. Technol.*, 42 : 9158 – 9164.
- [A4-74] Onishi Y., Serne R.J., Arnold E.M., Cowan C.E., Thompson F.L. 1981. Critical review: radionuclide transport, sediment transport and water quality mathematical modeling and radionuclide adsorption/desorption mechanisms. *Pacific Northwest Laboratory, Richland*.
- [A4-75] Owens S.A., Buesseler K.O., Sims K.W.W. (2011) Re-evaluating the ^{238}U -salinity relationship in seawater: Implications for the ^{238}U – ^{234}Th disequilibrium method. *Marine Chemistry* 127: 31-39.
- [A4-76] Palmer et Edmond (1993) Uranium in river water. *Geochim. Cosmochim. Acta* 57, 4947-4955
- [A4-77] Papanicolaou F., Antoniou S., Pashalidis I. 2010 Redox chemistry of sulphate and uranium in a phosphogypsum tailings dump. *J. Environ. Radioactiv.* 101 : 601 - 605.

- [A4-78] Paquet F., Adam-Guillermin C., Ansoborlo E., Beaugelin-Seiller K., Carrière M., Dublineau I., Taran F., Vidaud C. 2009. « Uranium », In Toxicologie nucléaire environnementale et humaine. Chapitre 23. Ménager M.T., Garnier-Laplace J., Goyffon M. (Coord). Editions Tec&Doc – Lavoisier, 411-443.
- [A4-79] Payne T.E., Brendler V., Comarmond M.J., Nebelung C. 2011. Assessment of surface area normalisation for interpreting distribution coefficients (Kd) for uranium sorption. J. Environ. Radioactiv. 102 : 888 - 895.
- [A4-80] 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 J.Y., Beguinel P., Cabanne N., De Paepe A., Santucci C., Prot T., Matray J.L., Tillie J.L. 2002. Radioactivité d'origine naturelle dans l'environnement en France : niveaux non perturbés par l'homme. Radioprotection 37 : 283 - 327.
- [A4-81] Porcelli D., Andersson P.S., Wasserburg G.J., 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.
- [A4-82] Pourcelot L., Masson O., Saey L., Conil S., Boulet B., Cariou N. 2017. Empirical calibration of uranium releases in the terrestrial environment of nuclear fuel cycle facilities. J. Environ. Radioactiv., 171 : 74-82.
- [A4-83] Pribil et Marvan (Pibril et Marvan), 1976 - Pribil S., Marvan P. 1976. Accumulation of uranium by the chlorococcal alga *Scenedesmus quadricauda*. Arch. Hydrobiol. 49: 214-25.
- [A4-84] Ramírez-Guinart O., Kaplan D., Rigol A., Vidal M. 2020. Deriving probabilistic soil distribution coefficients (Kd). Part 1: General approach to decreasing and describing variability and example using uranium Kd values. J. Environ. Radioactiv. 222 : 106362.
- [A4-85] Reeves B. Beccia M.R., Solari PL, Smiles D.E., Shuh D.K., Berthomieu C., Marcellin D., Bremond N., Mangialajo L., Pagnotta S., Monfort M. , Moulin C. , Den Auwer C., 2019. Uranium Uptake in Paracentrotus lividus Sea Urchin, Accumulation and Speciation. Environ. Sci. Technol. 53, 7974–7983. DOI: 10.1021/acs.est.8b06380
- [A4-86] Ribera D., Labrot F., Tisnerat G., Narbonne J.F. 1996. Uranium in the environment: occurrence, transfer, and biological effects. Rev. Environ. Contam. Toxicol. 146: 53–89
- [A4-87] Sarin MM, Church TM (1994). Behaviour of uranium during mixing in the delaware and chesapeake estuaries. Estuar Coast Shelf S, 39-6, 619-631
- [A4-88] Scheibener, S., Song, Y., Tollefsen, K.E., Salbu, B., Teien, H.C., 2021. Uranium accumulation and toxicokinetics in the crustacean Daphnia magna provide perspective to toxicodynamic responses. Aquatic Toxicology 235.
- [A4-89] Sheppard, S.C., Sheppard, M.I., Gallerand, M.O., Sanipelli, B., 2005. Derivation of ecotoxicity thresholds for uranium. Journal of Environmental Radioactivity 79, 55-83.
- [A4-90] Seder-Colomina M., Mangeret A., Stetten L., Merrot P., Diez O., Julien A., Barker E., Thouvenot A., Bargar J., Cazala C., Morin G. 2018. Carbonate facilitated mobilization of uranium from lacustrine sediments under anoxic condition. Environ. Sci. Technol. 52 : 9615–9624.
- [A4-91] Seder-Colomina M., Mangeret A., Bauda P., Brest J., Stetten L., Merrot P., Julien A., Diez O., Barker E., Billoir E., Poupin P., Thouvenot A., Cazala C., Morin G. 2022. Influence of microorganisms on uranium release from mining-impacted lake sediments under various oxygenation conditions. Environ. Sci.: Process. Impacts (in press).
- [A4-92] Sheppard S.C. 2011. Robust Prediction of Kd from Soil Properties for Environmental Assessment. Hum. Ecol. Risk Assess. 17 : 263 - 279.
- [A4-93] Sheppard S.C., Sheppard M.I., Tait J.C., Sanipelli B.L. 2006. Revision and metaanalysis of selected biosphere parameter values for chlorine, iodine, neptunium, radium, radon and uranium. J. Environ. Radioactiv. 89 : 115 – 137.

- [A4-94] Siegal M.D., Bryan C.R. 2003. Environmental Geochemistry of Radioactive Contamination. Sandia National Laboratories
- [A4-95] Simon O., Garnier-Laplace J., Kinetic analysis of uranium accumulation in the bivalve *Corbicula fluminea*: effect of pH and direct exposure levels. *Aquatic Tox.* 68: 95-108.
- [A4-96] 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*. *Aquatic Tox.* 74: 372-383.
- [A4-97] Simon O., Floriani M., Cavalié I., Camilleri V., Adam C., Gilbin R., Garnier-Laplace J. 2011. Internal distribution of uranium and associated genotoxic damages in the chronically exposed bivalve *Corbicula fluminea*. *J. Environ. Radioact.* 102: 766-773.
- [A4-98] Simon O., Mottin E., Geffroy B., Hinton T.G. 2011. The effects of dietary uranium on reproductive endpoints (fecundity, survival, reproductive success) of the fish, *Danio rerio*. *Environ Toxicol Chem.* 30: 220-225
- [A4-99] Simon et al., 2013 - Simon O., Floriani M., Camilleri V., Gilbin R., Frelon S. 2013. Relative importance of direct and trophic uranium exposures in the crayfish *Orconectes limosus*: Implication for predicting uranium bioaccumulation and its associated toxicity. *Environ. Tox. Chem.* 32: 410-416.
- [A4-100] Simon, O., Gagnaire, B., Camilleri, V., Cavalié, I., Floriani, M., Adam-Guillermin, C., 2018. Toxicokinetic and toxicodynamic of depleted uranium in the zebrafish, *Danio rerio*. *Aquatic Toxicology* 197, 9-18.
- [A4-101] Simon, O., Gagnaire, B., Somnard, V., Pierrisnard, S., Camilleri, V., Carasco, L., Frelon, S., 2019. Uranium transfer and accumulation in organs of *Danio rerio* after waterborne exposure alone or combined with diet-borne exposure. *Environmental Toxicology and Chemistry* 38, 90-98.
- [A4-102] Simon, O., Coppin, F., Micozzi, N., Beaugelin-Seiller, K., Février, L., Henner, P., Gilbin, R., 2022. Chronic toxicity of uranium to three benthic organisms in laboratory spiked sediment. *Journal of Environmental Radioactivity* 241.
- [A4-103] Stetten L., Blanchart P., Mangeret A., Lefebvre P., Le Pape P., Brest J., Merrot P., Julien A., Proux O., Webb S.M., Bargar J.R., Cazala C., Morin G. 2018. Redox fluctuations and organic complexation govern uranium redistribution from U(IV)-phosphate minerals in a mining-polluted wetland soil, Brittany, France. *Environ. Sci. Technol.* 52 : 13099-13109.
- [A4-104] Stetten L., Lefebvre P., Le Pape P., Mangeret A., Blanchart P., Merrot P., Brest J., Julien A., Bargar J. R., Cazala C., Morin G. 2020. Experimental redox transformations of uranium phosphate minerals and mononuclear species in a contaminated wetland. *J. Hazard. Mat.* 121362.
- [A4-105] Theodorakopoulos N., Chapon V., Coppin F., Floriani M., Vercouter T., Sergeant C., Camilleri V., Berthomieu C., Février L. 2015. Use of combined microscopic and spectroscopic techniques to reveal interactions between uranium and *Microbacterium* sp. A9, a strain isolated from the Chernobyl exclusion zone. *J. Hazard. Mat.* 285: 285-293
- [A4-106] Thompson, P.A., Kurias, J., Mihok, S., 2005. Derivation and Use of Sediment Quality Guidelines for Ecological Risk Assessment of Metals and Radionuclides Released to the Environment from Uranium Mining and Milling Activities in Canada. *Environmental Monitoring and Assessment* 110, 71-85.
- [A4-107] Trenfield, M.A., Pease, C.J., Walker, S.L., Markich, S.J., Humphrey, C.L., van Dam, R.A., Harford, A.J., 2021. Assessing the Toxicity of Mine-Water Mixtures and the Effectiveness of Water Quality Guideline Values in Protecting Local Aquatic Species. *Environmental toxicology and chemistry* 40, 2334-2346.
- [A4-108] UNEP (United Nations Environment Programme) 2001. Depleted Uranium in Kosovo Post-Conflict Environmental Assessment.
- [A4-109] UNSCEAR 2017. Sources, effects and risks of ionizing radiation. UNSCEAR 2016 Report to the General Assembly, scientific Annexes A,B,C and D. United Nations, New York, January 2017, 516p.

- [A4-110]van Berk W., Fu Y. 2017. Redox roll-front mobilization of geogenic uranium by nitrate inputs into aquifers: risks for groundwater resources. *Environ. Sci. Technol.* 51 : 337-345.
- [A4-111]Vandenhove H., van Hees M., Wouters K., Wannijn J. 2007. Can we predict uranium bioavailability based on soil parameters? Part 1: Effect of soil parameters on soil solution uranium concentration. *Environ. Pollut.* 145 : 587 – 595.
- [A4-112]Windom, H., Smith, R., Niencheski, F., and Alexander, C. (2000) Uranium in rivers and estuaries of globally diverse, smaller watersheds. *Mar. Chem.* 68, 307-321.
- [A4-113]Zachara J.M., Long P.E., Bargar J., Davis J.A., Fox P., Fredrickson J.K., Freshley M.D., Konopka A.E., Liu C., McKinley J.P., Rockhold M.L., Williams K.H., Yabusaki S.B. 2013. Persistence of uranium groundwater plumes: Contrasting mechanisms at two DOE sites in the groundwater–river interaction zone. *J. Cont. Hydrol.* 147 : 45 – 72.

Annexe 5. Moyens et capacités de mesures de l'uranium pour les matrices environnementales et les aliments

5.1. Sur le terrain

5.1.1. Techniques de mesures de l'uranium sur le terrain

Les techniques de mesure de l'uranium sur le terrain sont identiques à celles décrites dans le rapport [A5-1], auxquelles vont s'ajouter des spécificités décrites dans les paragraphes suivants. Le schéma présenté sur la Figure A5 - 1, synthétise les techniques d'analyses des émetteurs α , les matrices pouvant être mesurées et les ordres de grandeurs des temps d'analyse associés à chaque technique.

5.1.1.1. Mesure de l'uranium par spectrométrie γ

Le photon γ de l'U-238 a une faible énergie (inférieur à 50 keV) et une faible intensité d'émission, ce qui rend sa détection difficile. Dans l'hypothèse d'un état d'équilibre entre l'U-238 et ses descendants et leurs rejets conjoints, la quantification de l'U-238 sur le terrain pourrait être envisagée par des mesures directes de ses descendants émetteurs γ (Pa-234m voire Th-234). Il en serait de même pour les prélèvements mesurés à l'aide de moyens de mesure installés dans des véhicules laboratoires.

L'uranium-235 est caractérisé par différents photons γ qui permettent en particulier pour de l'uranium-235 enrichi de le mesurer sur le terrain (mesures directes ou par le biais de prélèvements). Quant à l'uranium-234, sa détection par spectrométrie γ est rendue difficile de part les énergies et l'intensité des raies d'émission des photons γ très faibles.

Du fait des émissions γ de certains isotopes de l'uranium, des moyens mobiles de cartographie au sol peuvent être envisagés (mesure du débit d'équivalent de dose, mesure du taux de comptage...).

5.1.1.2. Mesure des émetteurs α par spectrométrie α

La quantification des émetteurs α à l'aide de spectromètre α nécessite une étape de préparation des échantillons en amont de la mesure. En effet, la mesure directe d'un frottis ou d'un filtre d'aérosols par spectrométrie α ne permet pas de disposer systématiquement d'un spectre exploitable (généralement en raison d'une atténuation de l'émission α trop importante par le média). La mise en œuvre des moyens de radiochimie classique utilisés en laboratoire consistant en une minéralisation du média et une séparation sur résine des radionucléides, est peu envisageable sur le terrain. Toutefois, une mesure par spectrométrie α dans un véhicule est possible avec au préalable une étape de préparation des échantillons très simplifiée (calcination, reprise des cendres par des réactifs chimiques puis mise à sec par évaporation sur coupelle)¹³. Elle permet une vérification de l'isotopie de l'uranium, essentiellement ^{238}U , $^{235+236}\text{U}$ et ^{234}U . Ce protocole de minéralisation des échantillons avant mesure étant très simple, cette méthode ne peut être utilisée que pour des échantillons de type frottis/filtres aérosols dont le média est constitué de cellulose (absence de fibre de verre dans le média) [A5-1].

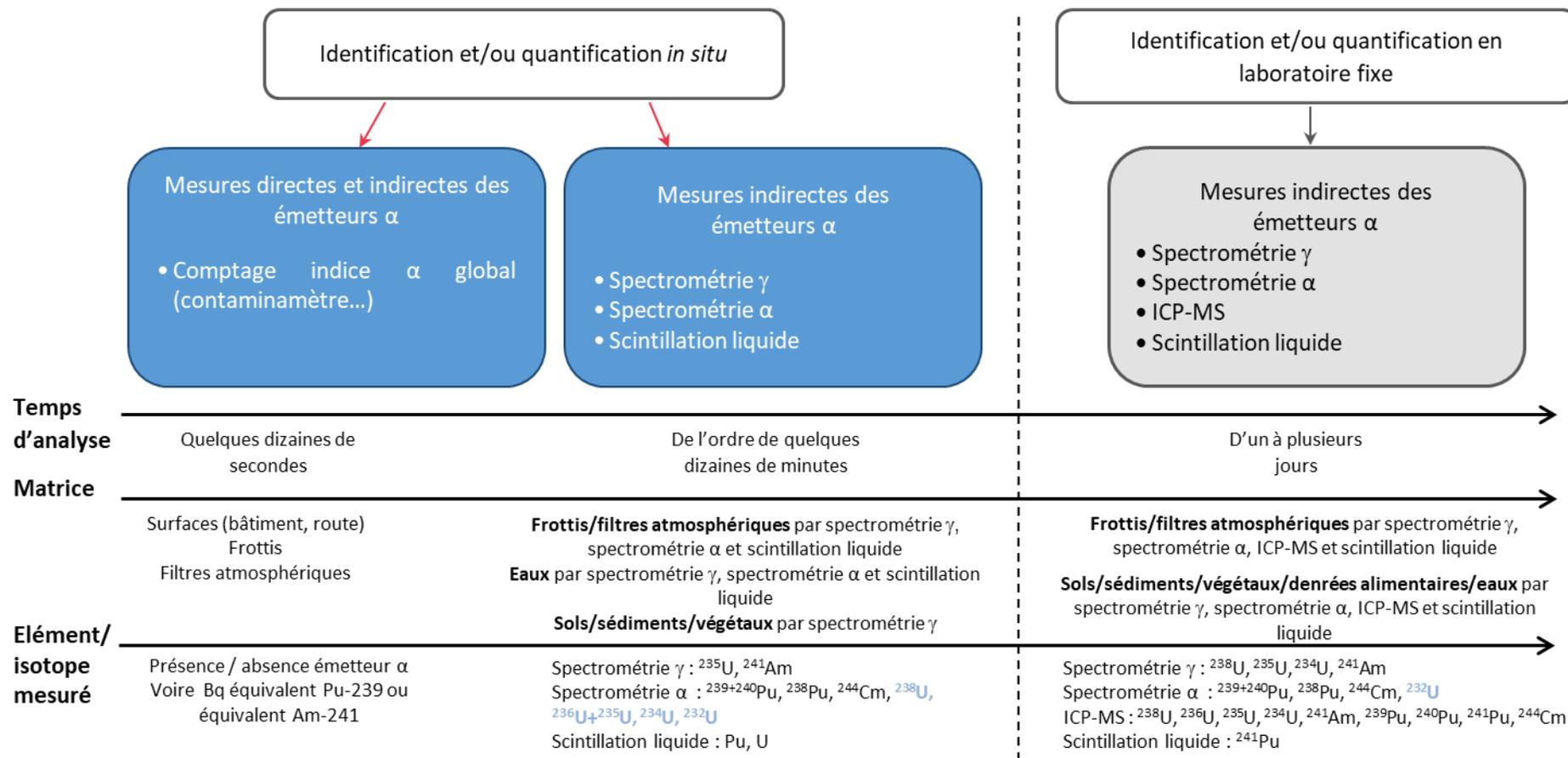
5.1.1.3. Mesure des émetteurs α par scintillation liquide

Les radionucléides émetteurs α peuvent être détectés par scintillation liquide. Cette technique de mesure ne nécessite pas d'étape de préparation préalable à la mesure si ce n'est l'introduction de l'échantillon dans un flacon et l'ajout du liquide scintillant. Un radionucléide émetteur α apparaîtra dans le spectre avec une énergie de l'ordre

¹³ Ce protocole simple permet non seulement de passer les échantillons de la forme solide à la forme liquide, mais également d'éliminer le radon qui pourrait interférer lors de la mesure par spectrométrie α sur le terrain.

de 10 % de son énergie, se retrouvant ainsi dans les gammes d'énergie de radionucléides émetteurs β . Il est donc difficile de discriminer les émetteurs α des émetteurs β par cette technique, sans dispositif complémentaire.

Certains compteurs à scintillation liquide sont dotés de système électronique de discrimination α/β permettant alors une distinction éventuelle de l'élément plutonium de l'élément uranium. Toutefois même en présence de ce système de discrimination, les performances de ces appareils ne permettent pas de séparer les isotopes du plutonium ou de l'uranium [A5-1].



En bleu, les ajouts par rapport au schéma présenté dans le rapport [A5-1].

Figure A5 - 1 : Schéma des analyses des émetteurs α réalisables sur le terrain et en laboratoire (Il est entendu par mesures directes, une mesure faite sans prélèvement de matière)

5.1.2. Seuil de décision/limite de détection des mesures des émetteurs α sur le terrain

Mesure directe		Seuil de décision (Limite de détection) (Bq/m ²)	Capacité / jour / appareil
Spectrométrie γ in situ fixe (30 minutes de comptage)	Am-241	Installations avec rejet uniquement Pu, Am	3 000 (6 300)
		Installations avec rejet Pu, Am et autres radionucléides émetteurs γ	10 000 – 25 000 (21 000 – 52 500)
	U-235	Installations avec rejet uniquement Pu, Am	200 (410)
		Installations avec rejet Pu, Am et autres radionucléides émetteurs γ	500 – 1 500 (1 100 – 3 200)

Mesure directe		Seuil de décision (Limite de détection) (Bq/m ²)	Capacité / jour / appareil
Comptage de l'indice α global (30 secondes de comptage)	Indice α global - Contaminamètre	60 – 120 (120 – 240)	35 - 70

Mesure indirecte sur prélèvement de frottis		Seuil de décision ⁽¹⁾ (Limite de détection) (Bq/m ²)	Capacité / jour / appareil	
Comptage de l'indice α global (30 secondes de comptage)	Indice α global - Contaminamètre	1 000 – 4 335 (2 000 – 9 000)	35 - 60	
	Indice α global - Autre compteur α/β de terrain	70 – 935 (140 – 1 900)	40 - 80	
Scintillation liquide (sans discrimination des isotopes) (30 minutes de comptage)	Soit Pu soit U	100 (200)	80	
	Pu + U	335 (670)		
Spectrométrie α après une étape de calcination et une mise en solution (discrimination des isotopes) (30 minutes de comptage)	Pu ou U	35 (70)	10 - 20	
Spectrométrie γ (Véhicule laboratoire) (10 minutes de comptage)	Am-241	Détecteur NaI	670 (1 340)	
		Détecteur Ge	5 000 (10 000)	
	U-235	Détecteur NaI	2 000 (4 200)	70
		Détecteur Ge	1 000 (2 100)	
	Cs-137	Détecteur NaI	500 (1000)	

	Détecteur Ge	1 000 (2 000)
Pa-234m	Détecteur NaI	25 000 (57 000)
	Détecteur Ge	180 000 (455 000)

(1) Seuil de décision calculé avec un facteur d'arrachement⁽²⁾ de 10 % et une surface frottée de 300 cm².

(2) Il est à noter que pour les prélèvements par frottis, la totalité des particules radioactives présentes sur un support n'est pas transférée sur le média. L'efficacité du prélèvement par cette méthode, dénommé facteur d'arrachement, prend une valeur de 10 %, valeur consensuelle sur le plan international. Ce facteur dépend de différents paramètres, tels que le radionucléide, sa forme chimique, la nature du substrat sur lequel il est déposé, le type de frottis utilisé, la pression exercée lors du prélèvement... Par exemple, pour le plutonium sous sa forme chimique PuO₂ le facteur d'arrachement varie de 20 % sur un linoleum non ciré à 58 % pour un linoleum ciré, et il est de 14 % sur du PVC. Sous sa forme Pu(NO₃)₄ il est de 6 % sur du linoleum ciré [A5-3]. Pour l'uranium, le facteur d'arrachement varie de 2-3 % sur des surfaces béton ou plaques de métal rugueuses à 20-70 % pour d'autres supports [A5-3].

Mesure indirecte sur prélèvement d'eaux		Seuil de décision (Limite de détection) (Bq/L)		Capacité / jour / appareil	
Scintillation liquide (sans discrimination des isotopes) (30 minutes de comptage)	Eau	Soit Pu soit U	60 (120)	80	
		Pu + U	200 (400)		
Spectrométrie γ ⁽³⁾ (Véhicule terrain laboratoire) (10 minutes de comptage)	Eau	Am-241	Détecteur NaI	10 (20)	70
			Détecteur Ge	230 (480)	
		U-235	Détecteur NaI	60 (130)	
			Détecteur Ge	30 (65)	
		Cs-137	Détecteur NaI	8 (16)	
			Détecteur Ge	10 (20)	
		Pa-234m	Détecteur NaI	550 (1 500)	
			Détecteur Ge	450 (1 050)	

(3) Volume d'eau mesurée : 0,5 L

Mesure indirecte sur prélèvement de sols/sédiments/ végétaux	Seuil de décision ⁽⁴⁾ (Limite de détection) (Bq/m ²)		Capacité / jour / véhicule laboratoire ?	
Spectrométrie γ (Véhicule terrain laboratoire) (10 minutes de comptage)	Sol	Am-241	Détecteur NaI 400 (840)	70
			Détecteur Ge 3 600 (7 500)	
		U-235	Détecteur NaI 1 200 (2 500)	
			Détecteur Ge 600 (1 250)	
		Cs-137	Détecteur NaI 200 (400)	
			Détecteur Ge 290 (580)	
	Pa-234m	Détecteur NaI 11 000 (24 000)		
		Détecteur Ge 60 000 (150 000)		
	Herbe	Am-241	Détecteur NaI 5 (10)	
			Détecteur Ge 85 (180)	
		U-235	Détecteur NaI 25 (50)	
			Détecteur Ge 15 (30)	
Cs-137		Détecteur NaI 4,5 (9)		
		Détecteur Ge 8,5 (17)		
Pa-234m		Détecteur NaI 300 (600)		
		Détecteur Ge 1 500 (3 600)		

(4) Surface de sol mesurée : 0,025 m² ; Surface d'herbe mesurée : 1 m²

5.1.3. Autres techniques de mesure de terrain

Des équipements de mesure par fluorescence X sur le terrain existent et permettraient de connaître la concentration en uranium (sans distinction de l'isotopie). Ce type d'appareil n'est pas utilisé au sein de l'IRSN qui n'en connaît pas les performances.

5.2. En laboratoire

Remarque 1 : L'ensemble des données techniques d'intérêt pour les laboratoires de mesure en charge à l'IRSN de l'analyse des isotopes de l'uranium, du plutonium et de l'américium sont synthétisées dans les fiches métrologiques données en annexe.

Elles seraient à établir par chaque laboratoire concerné, de préférence de manière anticipée, afin d'être en mesure d'indiquer aux prescripteurs de ces analyses, rapidement et sous une forme synthétique, ses capacités et son niveau de performance métrologique pour un type d'analyse donné.

Remarque 2 : Contrairement aux techniques de mesure nucléaires basées sur la détection du rayonnement radioactif, l'ICP-MS permet de quantifier les isotopes en fonction de leur masse. Le résultat est ainsi obtenu en concentration massique et est converti en activité à posteriori en se basant sur l'activité spécifique.

5.2.1. Isotopes de l'uranium

En laboratoire, la quantification de l'uranium dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par méthodes pondérales soit par méthodes isotopiques. Selon les cas, l'analyse d'échantillons liquides ou solides peut être effectuée directement ou après traitement de l'échantillon (minéralisation, purification, filtration).

- Méthodes pondérales
 - l'ICP-AES permet de quantifier des concentrations minimales d'uranium de 10 à 100 µg/L dans l'eau, mais sans précision de l'isotopie. Des eaux parfaitement limpides peuvent ne pas nécessiter de traitement préalable.
- Méthodes isotopiques
 - Spectrométrie γ
 - Si la spectrométrie γ est moins performante (10 à 100 Bq/L ou kg) que la spectrométrie α 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 isotopique nécessaire à ces deux méthodes.
 - Spectrométrie α
 - Cette technique permet également de quantifier chacun des isotopes de l'uranium avec des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie γ . Elle requiert cependant, obligatoirement en préalable à la mesure, une préparation chimique de l'échantillon. Les limites de détection classiquement atteintes sont pour ^{238}U de l'ordre de 0,01 Bq/L pour les matrices liquides et de l'ordre de 1 Bq/kg pour les matrices solides.
 - Spectrométrie de masse
 - L'avantage de l'ICP-MS par rapport à la spectrométrie α est la rapidité de la mesure (quelques minutes) et la possibilité de faire une mesure directe (sans purification chimique) pour des matrices liquides peu chargées en sels.
 - Les limites de détection calculées avec les protocoles de routine et en utilisant un ICP-MS quadripolaire sont pour ^{238}U de l'ordre de 0,5 Bq/kg pour les matrices solides et de 0,5 mBq/L, pour les eaux ou liquides ayant subi un traitement radiochimique.
 - Sur les eaux ou liquides mesurés directement après dilution - sans radiochimie - la spectrométrie de masse permet une limite de détection pour l'uranium total de l'ordre de 4 mBq (0,1 µg)/L.

L'ICP-MS permet également de détecter la présence de ^{236}U , indicateur de l'origine naturelle d'un échantillon contenant de l'uranium (Figure A5 - 2). Les rapports isotopiques en masse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ du fond géochimique ne sont pas atteignables avec des ICP-MS classiques.

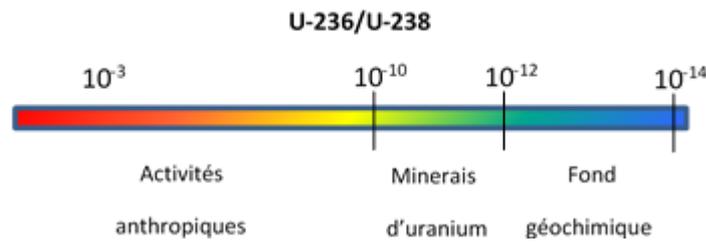


Figure A5 - 2 : Variation du rapport isotopique en masse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans l'environnement

Les rapports isotopiques en masse de $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ permettent d'estimer l'origine de l'uranium :

- entre 10^{-14} et 10^{-13} , caractéristique du fond géochimique [A5-4] ;
- entre 10^{-12} et 10^{-10} pour le minerai d'uranium (par le processus d'activation de l' $^{235}\text{U}(n,\gamma)$, création d' ^{236}U conduisant à un rapport isotopique différent du fond géochimique) [A5-4][A5-5] ;
- entre 10^{-9} et 10^{-6} , signal caractéristique de l' ^{236}U qui s'est déposé suite aux essais nucléaires atmosphériques, notamment dans l'hémisphère Nord [A5-6][A5-7] ;
- supérieur à 10^{-9} , rapport caractéristique d'un rejet accidentel ou non d'une installation nucléaire :
 - 10^{-6} - 10^{-3} pour l'accident de Tchernobyl [A5-8][A5-9],
 - 10^{-8} à 10^{-6} pour l'accident de Fukushima [A5-10][A5-11][A5-12],
 - 4.10^{-7} à 9.10^{-5} à proximité des installations françaises du cycle du combustible [A5-13],
 - 10^{-6} à 10^{-3} autour de Sellafield [A5-9][A5-14],
 - $1,5.10^{-8}$ à $2,5.10^{-8}$ dans les sédiments de la Loire, signature faisant probablement suite aux deux rejets accidentels de la centrale de Saint-Laurent-de-Eaux, en 1969 et 1980.

Ces rapports doivent néanmoins être interprétés avec beaucoup de précaution. En effet, la variation du rapport $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ dépend fortement des concentrations naturelles en ^{238}U , qui, si celles-ci sont très variables dans les échantillons considérés, peuvent masquer les variations seules de ^{236}U et rendre ainsi compliqué la discrimination des différentes sources. Ainsi, le rapport $^{233}\text{U}/^{236}\text{U}$ [A5-15][A5-16] permet de discriminer efficacement l' ^{236}U des retombées nucléaires de celui du nucléaire civil.

À titre indicatif, les performances et les capacités des laboratoires d'analyse de l'IRSN sont présentées dans le tableau suivant. Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens humains et techniques du laboratoire exclusivement dédié au type d'analyse évoqué.

Il est rappelé que pour les mesures d'activité (donc hors ICP-MS) une réduction du temps de comptage d'un facteur 4 n'augmente la limite de détection que d'un facteur 2.

Techniques d'analyses "compatibles crise" (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U voire ^{236}U)						
Echantillon	Technique de séparation	Technique de mesure	Quantité Minimale (de produits frais)	L.D. (temps de comptage)	Délai total ¹⁴	Capacité IRSN
Eaux	s.o.	ICP-MS	50 mL	U_{tot} : 0,1 µg/L ^{234}U : 2 mBq/L ^{235}U : 0,2 mBq/L ^{236}U : 0,002 mBq/L ^{238}U : 2 mBq/L	1 heure	40/jour
Solides/ liquides	radiochimie	Spectrométrie α	500 mL/ 5-10 g	^{234}U : 175 mBq/L ^{235}U : 4 mBq/L ^{238}U : 10 mBq/L ^{234}U : 17,5 Bq/kg ^{235}U : 0,4 Bq/kg ^{238}U : 1 Bq/kg (180 min)	1 jour	75/jour
Frottis/ Filtres	radiochimie	ICP-MS	s.o.	^{234}U : 0,1 mBq ^{235}U : 0,005 mBq ^{236}U : 0,001 mBq ^{238}U : 0,1 mBq	2 jours	10 à 20/jour
Solides/ liquides	radiochimie	ICP-MS	10 g	^{234}U : 0,5 mBq/L ^{235}U : 0,02 mBq/L ^{236}U : 0,005 mBq/L ^{238}U : 0,5 mBq/L ^{234}U : 0,5 Bq/kg ^{235}U : 0,02 Bq/kg ^{236}U : 0,001 Bq/kg ^{238}U : 0,5 Bq/kg	2 jours	10 à 20/jour

5.2.2. Isotopes du Plutonium et Américium

En laboratoire, la quantification du plutonium et de l'américium dans un échantillon de l'environnement est réalisée par des méthodes isotopiques. Selon les cas, l'analyse d'échantillons liquides ou solides peut être effectuée directement ou après traitement de l'échantillon (minéralisation, purification, filtration).

- $^{238,239,240}\text{Pu}$ sont mesurés dans les échantillons de l'environnement par spectrométrie α , obligatoirement précédée d'une séparation radiochimique. Les limites de détection sont de l'ordre de 0,1 mBq/kg. La spectrométrie α ne permet pas la discrimination du ^{239}Pu et ^{240}Pu . Cette discrimination est obtenue par spectrométrie de masse.

¹⁴ Temps de préparation inclus

- Pour des échantillons ayant une charge en Pu suffisante par rapport au bruit de fond des radionucléides des familles naturelles (uranium et thorium), une mesure en scintillation liquide est possible avec une limite de détection de l'ordre de 10 mBq pour ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et d'environ 50 mBq pour ^{241}Pu .
- Selon la provenance (donc l'isotopie) et l'âge du rejet en Pu, la mesure par spectrométrie γ de ^{241}Am (descendant de ^{241}Pu) peut fournir une information rapide sur l'ordre de grandeur des activités en Pu.

L'IRSN a développé une méthode et une instrumentation permettant, par couplage chromatographie ionique (C.I.I.) + ICP-MS ou compteur proportionnel (CP) (pour ^{90}Sr et ^{89}Sr), la mesure rapide et simultanée de $^{234, 235, 236, 238}\text{U}$, $^{230, 232}\text{Th}$, $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{237}Np , ^{241}Am , ^{244}Cm (et $^{89,90}\text{Sr}$). Cette technique ne permet pas la quantification du ^{238}Pu . Il peut être déduit, connaissant les autres isotopes, après une mesure de Pu_{total} ou faire l'objet d'analyses complémentaires par spectrométrie α .

- La définition de l'origine du plutonium repose souvent sur la détermination des rapports isotopiques :
 - $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 0,04 pour les retombées des essais militaires ;
 - de 0,2 à >1 pour les rejets industriels.
 - $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 0,18 pour les retombées des essais militaires ;
 - de l'ordre de 0,42 pour Tchernobyl.
 - $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 30 pour les usines de retraitement ;
 - de l'ordre de 16 pour des retombées de tests militaires.
- Des analyses Pu_{total} rapides sont possibles avec le système de type PERALS (extraction liquide-liquide spécifique avec scintillant puis mesure directe par scintillation liquide) : LD < 1 Bq/kg, délai 1 journée.

Compte tenu de la faible énergie (de l'ordre de 45 keV) et de la faible intensité d'émission du rayonnement γ (de l'ordre de 0,04 % pour les raies les plus intenses) la spectrométrie γ ne permet pas de quantifier de faibles niveaux de Pu. En mesure directe, des limites de détection de l'ordre de la dizaine de kBq/L ou par kg peuvent uniquement être envisagées (calculé sur la base des LD pour ^{129}I : 10 Bq/L ou kg (30 keV – 37 %) sachant que pour Pu dans la même zone d'énergie (45 keV) l'intensité d'émission (0,04 %) est 1000 fois moins intense donc les LD sont à multiplier par 1000).

À titre indicatif, les performances et les capacités des laboratoires d'analyse de l'IRSN sont présentées dans le tableau suivant. Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens du laboratoire exclusivement dédié au type d'analyse évoqué.

Techniques d'analyses "compatibles crise"					
Echantillon	Technique de séparation et de mesure	Quantité Minimale (produit frais)	L.D.	Délai	Capacité
Liquides	Mesure rapide simultanée par couplage C. I. + ICP-MS ²³⁴ U, ²³⁵ U, ²³⁶ U, ²³⁸ U, ²³⁰ Th, ²³² Th, ²³⁹ Pu, ²⁴⁰ Pu, ²³⁷ Np, ²⁴¹ Am, ²⁴⁴ Cm (et ^{89/90} Sr).	500 mL	²³⁸ U : 2.10 ⁻⁴ Bq/L ²³⁶ U : 9.10 ⁻⁸ Bq/L ²³⁵ U : 2.10 ⁻⁴ Bq/L ²³⁴ U : 2.10 ⁻³ Bq/L ²³⁹ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴⁰ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴¹ Pu : 1 Bq/L ²⁴¹ Am : 0,02 Bq/L (²³⁸ Pu : qqes mBq/L)		
Solides	La fraction ²³⁸ Pu ne peut être caractérisée que par spectrométrie α complémentaire ou éventuellement par calcul à partir de la connaissance de l'activité Pu _{total} .	0,5 g	²³⁸ U : 0,2 Bq/kg ²³⁶ U : 3.10 ⁻⁴ Bq/kg ²³⁵ U : 0,2 Bq/kg ²³⁴ U : 2 Bq/kg ²³⁹ Pu : 0,4 Bq/kg ²⁴⁰ Pu : 1,5 Bq/kg ²⁴¹ Pu : 700 Bq/kg ²⁴¹ Am : 7 Bq/kg (²³⁸ Pu : qqes Bq/kg)	1 jour (+ 1 semaine pour ²³⁸Pu)	5 à 10/jour (²³⁸ Pu par spectro α)
Frottis		S.O.	²³⁸ U : 1.10 ⁻⁴ Bq ²³⁶ U : 2.10 ⁻⁷ Bq/kg ²³⁵ U : 1.10 ⁻⁴ Bq ²³⁴ U : 1.10 ⁻³ Bq		
Tous types	Mesures γ	500 ml ou g	10 000 Bq/L ou kg _{frais}	1 jour	

5.3. Les laboratoires hors IRSN

Au-delà des laboratoires de l'IRSN, La directive interministérielle du 29 novembre 2005 relative à la réalisation et au traitement des mesures de radioactivité dans l'environnement en cas d'évènement entraînant une situation d'urgence radiologique identifie différents acteurs :

- Laboratoires du RNM agréés par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) ;
- Laboratoires agréés par la Direction Générale de l'Alimentation (DGAL) : Laboratoires Départementaux d'Analyses et Laboratoires Vétérinaires Départementaux ;
- Laboratoires agréés par la Direction Générale de la Santé (DGS) pour les mesures de radioactivité dans les eaux potables ;
- Laboratoires dépendant de la Direction Générale de la Concurrence, de la Consommation et de la Répression des Fraudes du ministère chargé de l'économie (DGCCRF).

Il peut également être fait appel à des laboratoires d'organismes étrangers, notamment dans le cadre des conventions d'assistance.

Au sein de ces réseaux de nombreux laboratoires disposent d'une structure permettant la réalisation en routine de mesures de radioactivité sur des échantillons prélevés dans l'environnement ou des denrées alimentaires :

- Laboratoires des exploitants (CEA, EDF, ORANO ...) ;

- Laboratoires associatifs (CRIIRAD, ACRO...);
- Laboratoires universitaires : RAMSES (Université de Strasbourg), SMART-SUBATECH (Ecole des Mines de Nantes) ...;
- Laboratoires privés (ALGADE, Eurofins Eichrom Radioactivité ...).

5.3.1. Le Réseau National de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (RNM)

La grande majorité de ces laboratoires est fédérée au sein du Réseau National de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (RNM).

Ils sont agréés par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) pour les analyses qu'ils pratiquent parmi celles répertoriées dans la grille d'agrément présentée dans le Tableau A5 - 1 suivant.

Les mesures d'activité réalisées sur des échantillons de l'environnement par les laboratoires agréés par l'ASN concernent principalement :

- Les radionucléides émetteurs γ (> 100 keV) dans les eaux, les sols, les échantillons biologiques, les aérosols ;
- Les mesures α globales dans les eaux et les aérosols ;
- Les mesures β globales dans les eaux et les aérosols ;
- La mesure de tritium dans les eaux et dans l'air.

5.3.2. Les laboratoires DGAL

La Direction Générale de l'Alimentation (DGAL) du ministère de l'agriculture fédère 8 laboratoires départementaux d'analyses relevant des conseils généraux des départements : Bouches-du-Rhône (13), Corrèze (19), Haute-Garonne (31), Loire-Atlantique (44), Manche (50), Puy-de-Dôme (63), Tarn-et-Garonne (82) et Haut-Rhin (68).

Consécutivement à l'accident de Tchernobyl, ces laboratoires ont la mission de surveiller la contamination des denrées et de s'assurer de l'absence de contamination de tout produit alimentaire en provenance des zones voisines d'installations nucléaires.

Ils sont agréés chaque année par la DGAL sur la base de leur participation à des EIL organisés par l'IRSN et accrédités par le COFRAC pour la mesure du ^{137}Cs et du ^{134}Cs dans les denrées alimentaires (viande de bovin et de porc, lait de bovin, de caprin et d'ovin, fromage de caprin et d'ovin, gibier sauvage, miel). Certains laboratoires ont également la capacité de mesurer l' ^{131}I .

Ils n'ont pas d'expérience pratique leur permettant la prise en charge d'échantillons présentant des niveaux d'activité élevés ni la mesure d'émetteurs α .

Nota : IRSN/SAME est le « Laboratoire National de Référence Radionucléides » dans le domaine de la santé publique vétérinaire et de la protection des végétaux (LNR RN) désigné par la Direction générale de l'alimentation (DGAL) du Ministère de l'Agriculture.

Code	Catégorie de mesures radioactives	Type 1 : eaux, eaux de surface, eaux souterraines, eaux de rejet...	Type 2 : matrices sols – Terres, sédiments, boues...	Type 3 : matrices biologiques – Végétaux, lait, faune, flore...	Type 4 : aérosols sur filtre	Type 5 : gaz air	Type 6 : milieu ambiant (sol/air)	Type 7 : denrées alimentaires pour contrôle sanitaire	
_01	Radionucléides émetteurs γ >100 keV	1_01	2_01	3_01	4_01	5_01	-	7_01	
_02	Radionucléides émetteurs γ <100 keV	1_02		2_02	3_02	4_02	5_02	-	7_02
_03	Alpha global	1_03	-	-	4_03	-	-	-	
_04	Bêta global	1_04		-	-	4_04	-	-	
_05	^3H	1_05	2_05	3_05	-	5_05	-	-	
_06	^{14}C	1_06		2_06	3_06	-	5_05	-	
_07	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	1_07	2_07	3_07	4_07	-	-	-	
_08	Autres émetteurs bêta purs	1_08		2_08	3_08	-	-	-	
_09	Isotopes de U	1_09	2_09	3_09	4_09	-	-	-	
_10	Isotopes de Th	1_10		2_10	3_10	4_10	-	-	
_11	^{226}Ra + descendants	1_11	2_11	3_11	-	^{222}Rn : 5_11	-	-	
_12	^{228}Ra + descendants	1_12		2_12	3_12	-	^{220}Rn : 5_12	-	
_13	Isotopes Pu, Am...	1_13	2_13	3_13	4_13	-	-	-	
_14	Gaz halogénés	-		-	-	-	5_14	-	
_15	Gaz rares	-	-	-	-	5_15	-	-	
_16	Dosimétrie gamma	-		-	-	-	-	6_16	
_17	Uranium pondéral	1_17	2_17	3_17	4_17	-	-	-	

Tableau A5 - 1 Grille d'agrément des laboratoires du RNM par l'ASN

5.3.3. Les laboratoires DGCCRF

Quatre des laboratoires du Service Commun des Laboratoires du ministère des finances (SCL) dépendant de la Direction Générale de la Concurrence de la Consommation et de la Répression des Fraudes (DGCCRF) disposent de moyens de mesure de la radioactivité. Ils sont situés à Lille, Marseille, Bordeaux et Strasbourg.

Ils ont pour mission la surveillance de la contamination radioactive des denrées alimentaires d'origine végétale mises sur le marché français.

Ils réalisent des analyses par spectrométrie γ : ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I (^{241}Am , ^{60}Co si nécessaire). Ils sont agréés de fait par la DGCCRF et accrédités COFRAC. Ils participent également aux EIL organisés par l'IRSN pour les laboratoires du Réseau DGAL.

Les laboratoires du SCL, comme ceux agréés par la DGAL, n'ont pas d'expérience pratique permettant une prise en charge d'échantillons significativement contaminés ou d'émetteurs alpha (hors ^{241}Am également mesurable par spectrométrie gamma).

5.3.4. Les laboratoires DGS

Onze laboratoires sont agréés par la Direction Générale de la Santé pour la mesure de radioactivité dans le cadre du contrôle sanitaire des eaux destinées à la consommation humaine.

- Sept laboratoires privés : SGS France Laboratoires de Rouen (76), Eurofins Eichrom Radioactivité (35), CARSO LSEHL (69), ALGADE LAE (69), Pe@rl (87), ALGADE LED (87), Laboratoire Phytocontrol (30) ;
- Trois laboratoires institutionnels : LABEO Manche (50), Laboratoires des Pyrénées et des Landes (65), Public Labos (82) ;
- Un laboratoire universitaire ou assimilé : Subatech/SMART (44).

Tous ces laboratoires sont agréés pour 5 ans par la DGS pour réaliser les analyses α global, β global et tritium (mesures de premier niveau) dans les eaux.

Certains sont également agréés pour tout ou partie des analyses suivantes :

- ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{131}I (spectrométrie γ à haute résolution) ;
- ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{234}U , ^{235}U et ^{238}U (spectrométrie α ou ICP-MS) ;
- ^{90}Sr (séparation radiochimique sur résine + mesure β par scintillation liquide).

Ils sont accrédités COFRAC et la majorité de ces laboratoires est également agréée par l'ASN, dans le cadre du RNM.

Nota : IRSN/SAME est le laboratoire de référence de la Direction générale de la santé (DGS) pour les analyses de radioactivité dans les eaux destinées à la consommation humaine

5.3.5. Synthèse sur les laboratoires hors IRSN

En plus des moyens de l'IRSN, ce sont donc de l'ordre de 70 laboratoires qui disposent de moyens d'analyse divers de la radioactivité dans des échantillons de l'environnement.

Si ces laboratoires offrent une capacité de mesure importante sur les filtres aérosols et sur les eaux, leur potentiel est plus réduit pour l'analyse de matrices solides (biologiques, sols).

En particulier la capacité de mesure d'émetteurs α ou β purs (hors comptages globaux) reste réduite et implique généralement des délais d'analyse qui sont longs donc inadaptés aux situations de crise.

En règle générale, ces laboratoires sont peu ou pas préparés à la gestion d'échantillons très significativement contaminés.

5.4. Laboratoires Potentiellement mobilisables

Ce chapitre présente les laboratoires qui seraient effectivement potentiellement mobilisables hors IRSN, pour les principales typologies d'accident envisageables et à l'origine de rejets :

- d'uranium ;
- de plutonium et d'américium.

Ces accidents conduiraient en particulier à des besoins importants de caractérisation des radionucléides rejetés dans des eaux et dans des échantillons biologiques. Hors IRSN, DGAL et DGCCRF, les laboratoires capables de réaliser ces mesures sont essentiellement identifiés par le biais de leur agrément au RNM, délivré par l'ASN, pour les analyses considérées (bilan au 1^{er} janvier 2022).

Les éléments présentés ne fournissent pas d'informations sur les capacités des laboratoires en termes de nombre d'échantillons analysables quotidiennement et de délai de rendu des résultats. Ces éléments resteraient à préciser le moment venu en fonction des caractéristiques réelles de la situation de crise rencontrée.

Les tableaux suivants présentent le potentiel des laboratoires (hors IRSN) mobilisables au 1^{er} janvier 2022 pour les mesures de l'uranium, du plutonium et de l'américium et de l'activité alpha globale dans des échantillons de l'environnement.

L'IRSN maintient à jour annuellement la liste nominative de tous les laboratoires du territoire national agréés par l'autorité de sûreté nucléaire pour ces types de mesure et les met à disposition de ses équipes de crises.

5.4.1. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'uranium

Type d'analyse	Type d'échantillon	Nombre de laboratoires (Hors IRSN)	Type de laboratoire
U isot.	Sols	18	Universitaire (4)
			Privés (4)
			Exploitants (8)
			Associatif (2)
U isot.	Eaux	15	Universitaire (1)
			Privé (5)
			Exploitant (9)
U isot.	Biologiques	12	Universitaire (2)
			Privé (3)
			Exploitant (7)
U isot.	Aérosols	12	Universitaire (1)
			Privé (3)
			Exploitant (8)

5.4.2. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure du plutonium et de l'américium par détection du rayonnement alpha

Type d'analyse	Type d'échantillon	Nombre de laboratoires (Hors IRSN)	Type de laboratoire
Pu-Am	Eau	13	Universitaire (1)
			Privé (4)
			Exploitant (8)
	Biologiques	11	Universitaire (1)
			Privé (3)
			Exploitant (7)
	Aérosols	11	Universitaire (1)
			Privé (3)
			Exploitant (7)
	Sols	12	Universitaire (1)
			Privé (3)
			Exploitant (8)

5.4.3. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'américium par détection du rayonnement gamma

Type d'analyse	Type d'échantillon	Nombre de laboratoires (Hors IRSN)	Type de laboratoire
Émetteurs gamma < 100 keV (²⁴¹Am)	Sols	28	Associatif (2)
			Institutionnel (1)
			Universitaire (5)
			Privé (4)
			Exploitant (16)
	Eaux	32	Associatif (2)
			Institutionnel (3)
			Universitaire (3)
			Privé (5)
			Exploitant (19)
	Denrées Alimentaires	6	Institutionnel (6)
			Associatif (2)
	Biologiques	30	Institutionnel (1)
			Universitaire (3)
			Privé (4)
			Exploitant (20)

5.4.4. Potentiel des laboratoires mobilisables pour la mesure de l'activité « alpha globale » d'un échantillon

Type d'analyse	Type d'échantillon	Nombre de laboratoires (Hors IRSN)	Type de laboratoire
Alpha global	Eaux	25	Institutionnel (2)
			Universitaire (2)
			Privé (6)
	Aérosols	20	Exploitant (15)
			Universitaire (1)
			Privé (2)
			Exploitant (17)

5.5. Lexique

Mesure directe/Mesure non destructive/Analyse non destructive	Ensemble de technique de mesures ou d'analyse permettant de mesurer des propriétés spécifiques en évitant la destruction physique du milieu ou de l'élément [A5-17].
Mesure in situ	Mesure non destructive dans laquelle l'appareil de détection est amené jusqu'au matériau à caractériser [A5-17].
Mesure indirecte/Mesure destructive/Analyse destructive	Analyse des matières radioactives ou chimiques reposant sur l'utilisation de méthodes impliquant la destruction de l'échantillon par des procédés mécaniques ou chimiques (par exemple analyse chimique et radiochimique, ICP-MS, spectrométrie alpha...) [A5-17].
Seuil de décision	Valeur de l'estimateur du mesurande telle que, quand le résultat d'une mesure réelle utilisant une procédure de mesure donnée d'un mesurande quantifiant le phénomène physique lui est supérieur, on décide que le phénomène physique est présent [A5-18].
Limite de détection	Plus petite valeur vraie du mesurande qui garantit pour une probabilité spécifiée qu'il soit détectable par la méthode de mesure [A5-18].
Mesurande	Grandeur que l'on veut mesurer [A5-18].

5.6. Références bibliographiques

- [A5-1] IRSN, 2021. Pertinence de la doctrine post accidentelle pour des accidents autres que ceux pouvant survenir sur un CNPE – Cas de rejets d'émetteurs alpha, à partir de l'exemple du plutonium. Rapport IRSN N°2021-00248.
- [A5-2] CODIRPA GT3, 2011. Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité en situation post-accidentelle. Rapport IRSN DEI/STEME n° 2011-02, p69.
- [A5-3] EPA, 2011. A performance-based approach to the use of swipe samples in response to a radiological or nuclear incident. Report EPA 600/R-11/122, p58.

- [A5-4] Steier P., Bichler M., Keith Fifield L., Golser L., Kutschera W., Priller A., Quinto F., Richter R., Srnick M., Terrassi P., Wacker L., Wallner A., Wallner G., Wilcken K. M., Wild E. M., 2008. Natural and anthropogenic ²³⁶U in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 266, 2246-2250.
- [A5-5] Zhao X.L., Nadeau M.-J., Kilius L.R., Litherland A.E., 1994. Detection of naturally occurring ²³⁶U in uranium ore. *Earth and Planetary Science Letters*, 124, 241-244.
- [A5-6] Sakagushi A., Kawai K., Steier P., Imanaka T., Hoshi M., Endo S., Zhumadilov K., Yamamoto M., 2010. Feasibility of using ²³⁶U to reconstruct close-in-fallout deposition from the Hiroshima atomic bomb. *Science of the Total Environment*, 408, 5392-5398.
- [A5-7] Quinto F., Hrncsek E., Krachler M., Shotyk W., Steier P., Winckler S. R., 2013. Measurements of ²³⁶U in ancient and modern peat samples and implications for post-depositional migration of fallout radionuclides. *Environmental Science & Technology*, 47, 5243-5250.
- [A5-8] Boulyga S. F., Becker J. S., 2001. Determination of uranium isotopic composition and ²³⁶U content in soils samples and hot particles using inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Analytical Chemistry*, 370, 612-617.
- [A5-9] Hotchis M. A. C., Child D., Fink D., Jacobsen G. E., Lee P. J., Mino N., Smith A. M., Tuniz C., 2000. Measurement of ²³⁶U in environmental media. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 172, 659-665.
- [A5-10] Jaegler H., Pointurier F., Diez-Fernández F., Gourgiotis A., Isnard H., Hayashi S., Tsuji H., Onda Y., Hubert A., Laceby J. P., Evrard O., 2019. Reconstruction of uranium and plutonium isotopic signatures in sediment accumulated in the Mano dam reservoir, Japan, before and after the Fukushima nuclear accident. *Chemosphere*, 225, 849-858.
- [A5-11] Yang G., Rahman M.S., Tazoe H., Hu J., Saho Y., Yamada M., 2019. ²³⁶U and radiocesium in riverbank soil and river sediment in Fukushima Prefecture, after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Chemosphere*, 225, 388-394.
- [A5-12] Nomura T., Sakaguchi A., Steier P., Eigl R., Yamakawa A., Watanabe T., Sasaki K., Watanabe T., Golser R., Takashi Y., Yamamo H., 2017. Reconstruction of the temporal distribution of ²³⁶U/²³⁸U in the Northwest Pacific Ocean using a coral core sample from the Kuroshio Current area. *Marine Chemistry*, 190, 28-34.
- [A5-13] Pourcelot L., Masson O., Saey L., Conil S., Boulet B., Cariou N., 2017. Empirical calibration of uranium releases in the terrestrial environment of nuclear fuel cycle facilities. *Journal of Environmental Radioactivity*, 171, 74-82.
- [A5-14] Lee S.H., Povinec P.P., Wyse E., Hotchkis M.A.C., 2008. Ultra-low-level determination of ²³⁶U in IAEA marine reference materials by ICPMS and AMS. *Applied Radiation and Isotopes*. 66, 823-828.
- [A5-15] Hain K., Steier P., Froelich M. B., Golser R., Hou X., Lachner J., Nomura T., Qiao J., Quinto F., Sakagushi A., 2020. ²³³U/²³⁶U signatures allow to distinguish environmental emissions of civil nuclear industry from weapons fallout. *Nature Communications*, 11, 1-11.
- [A5-16] Morereau A., Jaegler H., Hain K., Steier P., Golser R., Beaumais A., Lepage H., Eyrolle F., Grosbois C., Cazala C., Gourgiotis A. Deciphering sources of U contamination using isotopic signatures in the Loire River sediments: exploring the relevance of the ²³³U/²³⁶U ratio. Submitted to *Chemosphere*.
- [A5-17] NF ISO 18557, 2018. Principes de caractérisation des sols, bâtiments et infrastructures contaminés par des radionucléides, à des fins de réhabilitation.
- [A5-18] NF ISO 11929-1, 2020. Détermination des limites caractéristiques (seuil de décision, limite de détection et extrémités de l'intervalle de confiance) pour mesurages de rayonnements ionisants – Principes fondamentaux et applications – Partie 1 : applications élémentaires.

- [A5-19] Rapport IRSN/SAME N°2018-00004 : Mesure de la radioactivité d'échantillons de l'environnement et de denrées alimentaires en situation de crise - Localisation et capacités analytiques des laboratoires fixes français.
- [A5-20] Analyse rapide des actinides par couplage chromatographie liquide/ICP-MS et de ⁹⁰Sr par compteur proportionnel à gaz, dans les échantillons de l'environnement, en situation post-accidentelle. (Azza Habibi 2015)
- [A5-21] Séparation automatisée et couplage avec la mesure pour la quantification rapide des actinides et de ⁹⁰Sr
Azza HABIBI(a), Catherine COSSONNET(b), Béatrice BOULET(b), Fabrice LEPRIEUR(a) (a)IRSN/PRP-ENV/STEME/LTE, Le Vésinet (France) (b)IRSN/PRP-ENV/STEME/LMRE, Orsay
- [A5-22] Risque radiologique en situation post-accidentelle - Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité, Auteur(s) : Jean-Louis PICOLO, Stéphanie DEMONGEOT, Vincent GIRARD, Caroline QUINIO, Stéphane SCAPOLAN, Jean-Luc TILLIE. Date de publication : 10 juil. 2012 SL6162 v1
- [A5-23] Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité en situation post-accidentelle - Rapport IRSN DEI/STEME n°2011-02.

Annexe 6. Fiches "Métrologie Crise" de l'IRSN

Fiches Métrologie Crise - Laboratoires d'analyses de l'IRSN

Préambule

Ces fiches s'adressent en premier lieu **aux responsables des laboratoires fixes**, en charge de la gestion et de la réalisation des analyses d'échantillons de l'environnement, en situation de crise radiologique.

Elles sont à établir **par chaque laboratoire** de manière anticipée, afin d'être en mesure d'indiquer aux prescripteurs de ces analyses, **rapidement** et sous une forme **synthétique**, ses capacités et son niveau de performance métrologique pour un type d'analyse donné.

Elles ont pour objectif de rassembler les informations utiles :

- A la définition de la **stratégie de mesure** à appliquer en situation de crise pour les combinaisons matrice/radionucléide les plus probables ;
- A la prise en compte dans cette stratégie, le cas échéant, des **niveaux maximaux admissibles (NMA)** dans les denrées alimentaires (*Règlement EURATOM 2016/52*) ou des **références de qualité radiologique** réglementaires pour les eaux de consommation humaine (*Arrêté du 9 décembre 2015*) ;
- A la connaissance des **niveaux d'activité rencontrés usuellement dans l'environnement** (*des fiches d'information plus détaillées, à la source d'une partie des informations présentes dans ces fiches (environnement, radioprotection et santé), relatives à chaque radionucléide, sont accessibles sur le site internet de l'IRSN (<http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation>)*) ;
- A la prise en considération des **conditions de radioprotection** particulières à mettre en place dans les laboratoires (*le code couleur "radionucléide" : bleu, vert, jaune, orange, rouge, utilisé indique respectivement une radiotoxicité très faible, faible, modérée, forte ou très forte, conformément au "Guide pratique – Radioprotection et Radionucléides" - D. Delacroix et al.)*) ;
- A l'information du prescripteur d'analyses sur :
 - les **capacités du laboratoire** en nombre d'analyses réalisables (par jour ou par semaine) et le **délai de rendu d'un résultat** à réception d'un échantillon (*le code couleur : vert, orange, rouge, relatif aux "Délai" indique respectivement un délai minimal d'analyse de l'ordre de la journée, de quelques jours ou d'une semaine ou plus. Ces délais et les capacités quotidiennes s'entendent pour un déploiement exclusif des moyens (techniques et humains) du laboratoire pour le type d'analyse évoqué,*
 - le niveau de **performance métrologique envisageable**¹⁵ (incertitude et limite de détection),
 - les **quantités minimales d'échantillon** nécessaires pour une analyse (*ces quantités sont définies comme les quantités minimales permettant à l'analyste de réaliser sans difficulté la prise d'essai*

¹⁵ En fonction des objectifs de performance métrologique, imposés par la typologie de la crise, les temps de mesure proposés donc le nombre d'échantillons mesurables quotidiennement indiqués dans les fiches pourront être amenés à évoluer à la baisse ou à la hausse.

nécessaire à l'application de son protocole analytique. Elles sont, par définition très inférieures aux quantités demandées, essentiellement pour des raisons pratiques, aux équipes de prélèvement et ne doivent pas remettre en cause ces recommandations de prélèvement).

Elles contiennent également des informations diverses relatives :

- Aux données nucléaires (issues des tables du Laboratoire National Henri Becquerel (http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm);
- Aux seuils d'exemption de déclaration ou d'autorisation (en activité totale et en activité massique) prévus par le code de la santé publique pour l'utilisation de sources radioactives.

Les spécificités des différentes méthodes de mesure applicables sont indiquées.

Les éléments présentés sur ces fiches ne sont qu'indicatifs. Ils ne constituent en aucun cas un engagement du laboratoire et sont susceptibles d'ajustements en fonction des circonstances particulières de l'incident ou de l'accident radiologique concerné et de l'évolution de la situation.

Remarque

Nature de l'échantillon	Poids Frais / Poids	Poids Sec / Poids Cendres	Poids Frais / Poids
Végétaux divers			
Herbe	4	4	16
Persil	4	9	36
Mousse terrestre	1,5	15	22,5
Légumes - feuilles			
Salade	14	5	70
Légumes - fruits			
Tomate	15	5	75
Haricot	11	7	77
Légumes - racines			
Carotte	13	6	78
Pomme de terre	5	4	20
Radis	15	5	75
Graines			
Blé	1,2	75	90
Maïs	1,5	70	105
Fruits			
Pomme	7	-	-
Citron (épluché)	11	6	66
Raisin	8	7	56
Produits laitiers			
Lait	9	15	135
Fromage (chèvre)	2	20	40
Produits alimentaires divers			

Vin rouge	30	1300	39000
Miel	1,5	-	-
Mollusques			
Moule	6	3	18
Bulot	4	12	48
Patelle	4	-	-

Certains protocoles analytiques (essentiellement ceux mis en œuvre pour la caractérisation de radionucléides émetteurs α ou β purs) imposent une phase de traitement préalable de l'échantillon frais (séchage, calcination...) pour pouvoir l'analyser.

Les activités massiques, obtenues à l'issue de l'analyse sont alors exprimées par le laboratoire de mesure en Bq/kg_{sec} ou Bq/kg_{cen}.

Une conversion en Bq/kg_{frais}, unité dans laquelle le résultat est généralement attendu par les gestionnaires de crise peut être nécessaire. Par exemple :

$$Bq/kg_{frais} = \frac{Bq/kg_{sec}}{Poids\ Frais / Poids\ Sec}$$

Cette conversion implique la connaissance du rapport existant entre le poids frais, le poids sec et/ou le poids de cendres de l'échantillon.

Ces rapports sont très variables d'un échantillon à l'autre. Pour permettre de situer leur ordre de grandeur le tableau suivant donne des exemples de rapports moyens issus des bases de données de l'IRSN.

Uranium

- ^{232}U ($T_{1/2}$: 69,9 ans – $A_s = 8,2.10^{11}$ Bq/g - émetteur α) : 5320 keV (68,8 %), 4775 keV (71 %).
- ^{233}U ($T_{1/2}$: $1,6.10^5$ ans – $A_s = 3,6.10^8$ Bq/g - émetteur α) : 4824 keV (83 %), 4775 keV (71 %).
- ^{234}U ($T_{1/2}$: $2,45.10^5$ ans – $A_s = 2,3.10^8$ Bq/g - émetteur α) : 4722 keV (28 %), 4775 keV (71 %).
- ^{235}U ($T_{1/2}$: $7,04.10^8$ ans – $A_s = 1,6.10^5$ Bq/g - émetteur α) : 4366 keV (19 %), 4398 keV (57 %) - γ 186 keV (57 %).
- ^{236}U ($T_{1/2}$: $23,43.10^6$ ans – $A_s = 8,4.10^9$ Bq/g - émetteur α) : 4445 keV (26 %), 4494 keV (74 %).
- ^{238}U ($T_{1/2}$: $4,47.10^9$ ans – $A_s = 2,5.10^4$ Bq/g - émetteur α) : 4151 keV (22 %), 4198 keV (77 %).

- Groupe de risque : 1 (très forte radiotoxicité).
- Activité maximale manipulable (pour chaque isotope) : 10^4 Bq sous hotte ventilée - 10^3 Bq sur pailleasse.
- Seuils d'exemption d'autorisation ASN : 10^4 Bq - 10 Bq/g pour tous les isotopes sauf ^{232}U : 10^3 Bq - 1 Bq/g.

Teneurs rencontrées usuellement dans l'environnement (France métropolitaine)

- Seuls ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U sont présents naturellement dans l'environnement¹⁶. D'autres isotopes radioactifs de l'uranium (^{232}U , ^{233}U , ^{236}U) existent mais ils sont produits artificiellement.
- Concentrations U_{nat} rencontrées usuellement :
 - Sols et sédiments de quelques Bq (*de l'ordre de 100 μg*)/ kg_{sec} à quelques centaines de Bq (de l'ordre de 10 mg)/ kg_{sec} . Autour des installations de l'amont du cycle du combustible nucléaire de l'ordre de 100 Bq (*3,8 mg*)/ kg_{sec} .
 - Air de l'ordre de 1 μBq (*0,038 ng*)/ m^3 hors de l'influence d'installations nucléaires. Dans l'environnement d'une usine de traitement de l'uranium (moins de 2 km), de 1 à 900 μBq (*0,038 à 34 ng*)/ m^3 .
 - Eaux de rivière entre 0,01 et 0,1 Bq (*0,38 et 3,8 μg*)/L.
 - Milieu marin, la teneur moyenne de cet élément est de 86 mBq (*3,3 μg*)/L.
 - Lait : 1 mBq (*0,038 μg*)/kg.
 - Viande : 2 mBq (*0,076 μg*)/kg.
 - Céréales : 20 mBq (*0,76 μg*)/kg.
 - Légumes feuilles : 20 mBq (*0,76 μg*)/kg.
 - Légumes racines et fruits : 3 mBq (*0,114 μg*)/kg.

Limites et références de qualité des eaux (brutes et destinées à la consommation humaine)

- Dans le cadre de la réglementation française relative à la qualité radiologique des eaux de consommation humaine (arrêté du 1^{er} septembre 2003). La limite de détection maximale autorisée est de 0,005 Bq/L pour ^{234}U et ^{238}U . La concentration dérivée

¹⁶ L'activité de ^{236}U présent naturellement dans l'environnement est très faible, sa détection nécessite des moyens analytiques spécifiques. Il n'est donc pas pris en compte dans les paragraphes qui suivent.

de référence (activité qui serait à l'origine d'une dose de 0,1 mSv par an pour un adulte consommant 730 litres dans le cas de la présence exclusive du radionucléide considéré) est de 2,8 Bq/L pour ^{234}U et 3,0 Bq/L pour ^{238}U

- Comme indiqué dans les publications de l'OMS relative à la qualité des eaux de boisson, l'uranium est un métal surtout chimiquement toxique. Selon le guide OMS pour la qualité des eaux potables "Guidelines for Drinking Water Quality" (2011) la concentration journalière admissible dans l'eau de boisson est égale à 30 $\mu\text{g/L}$.

Techniques d'analyses "compatibles crise" (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U voire ^{236}U)

Echantillon	Technique de séparation	Technique de mesure	Quantité Minimale (de produits frais)	L.D. ¹⁷ (pour U_{nat}) (temps de comptage)	Délai	Capacité ¹⁸
Eaux	s.o.	ICP-MS	50 mL	$U_{\text{tot}} : 0,1 \mu\text{g/L}$ $U_{\text{tot}} : 2,6 \text{ mBq/L}$	1 heure	20/jour (Le Vésinet) 20/jour (Orsay)
Solides/liquides	radiochimie	Spectrométrie α	500 mL/ 5-10 g	$U_{\text{tot}} : 10 \text{ à } 100 \text{ Bq/L ou kg}$ $U_{\text{tot}} : 0,38 \text{ à } 3,8 \text{ mg/L ou kg}$ (180 min)	1 jour	50/jour (Le Vésinet) 25/jour (Orsay)
Frottis/Filtres	radiochimie	ICP-MS	s.o.	$U_{\text{tot}} : 1 \text{ mBq}$ $U_{\text{tot}} : 0,038 \mu\text{g}$	2 jours	5 à 10/jour (Le Vésinet) 5 à 10/jour (Orsay)
Solides	radiochimie	ICP-MS	10 à 20 g	$U_{\text{tot}} : 1 \text{ Bq/kg}$ $U_{\text{tot}} : 38 \mu\text{g/kg}$	2 jours	5 à 10/jour (Le Vésinet) 5 à 10/jour (Orsay)

Spécificité des méthodes de mesure

- La quantification d'U dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par méthodes pondérales soit par méthodes isotopiques. 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
 - l'ICP-AES permet de quantifier des concentrations minimales de 10 à 100 $\mu\text{g/L}$ dans l'eau. Des eaux parfaitement limpides peuvent ne pas nécessiter de traitement préalable.
- Méthodes isotopiques
 - Spectrométrie γ
 - Si la spectrométrie γ est moins performante (10 à 100 Bq/L ou kg) que la spectrométrie α 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 isotopique nécessaire à ces deux méthodes.
 - Spectrométrie α
 - Cette technique permet également de quantifier chacun des isotopes d'U avec des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie γ . Elle requiert cependant,

¹⁷Il est rappelé que pour les mesures d'activité (donc hors ICP-MS) une réduction du temps de comptage d'un facteur 4 n'augmente la limite de détection que d'un facteur 2.

¹⁸ Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens du laboratoire exclusivement dédié au type d'analyse évoqué.

obligatoirement en préalable à la mesure, une préparation chimique de l'échantillon. Les LD classiquement atteintes sont de l'ordre de 0,01 Bq (0,38 µg)/L pour les matrices liquides et de l'ordre de 1 Bq (38 µg)/kg pour les matrices solides.

- Spectrométrie de masse
 - L'avantage de l'ICP-MS par rapport à la spectrométrie α est la rapidité de la mesure (quelques minutes) et la possibilité de faire une mesure directe (sans purification chimique) pour des matrices liquides peu chargées en sels.
 - Les limites de quantification calculées avec les protocoles de routine et en utilisant un ICP-MS quadripolaire sont de l'ordre de 1 Bq (38 µg)/kg pour les matrices solides et de 0,01 mBq (0,38 ng)/L, pour les eaux ou liquides ayant subi 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 1 mBq (0,1 µg)/L.

Autres informations

- Abondance naturelle :
 - Masse (^{234}U : 0,0057 % ; ^{235}U : 0,719 % ; ^{238}U : 99,275 %).
 - Activité (^{234}U : 49,99 % ; ^{235}U : 2,23 % ; ^{238}U : 47,78 %).
- Pour U_{nat} : 1 Bq = 38 µg - 1 µg = 26 mBq.

Plutonium et Américium

- ^{238}Pu ($T_{1/2}$: 87,74 ans – $A_s = 6,4 \cdot 10^{11}$ Bq/g - émetteur α) : 5456 keV (29 %), 5499 keV (71 %).
- ^{239}Pu ($T_{1/2}$: 24100 ans – $A_s = 2,3 \cdot 10^9$ Bq/g - émetteur α) : 5106 keV (12 %), 5144 keV (17 %), 5157 keV (71 %).
- ^{240}Pu ($T_{1/2}$: 6561 ans – $A_s = 8,4 \cdot 10^9$ Bq/g - émetteur α) : 5124 keV (27 %) et 5168 keV (73 %).
- ^{241}Pu ($T_{1/2}$: 14,33 ans – $A_s = 3,8 \cdot 10^{12}$ Bq/g - émetteur β) : 20,8 keV (100 %).
- ^{241}Am ($T_{1/2}$: 432,6 ans – $A_s = 1,3 \cdot 10^{11}$ Bq/g - émetteur α) : 5388 keV (2 %), 5443 keV (13 %), 5486 keV (84 %) et γ : 59,54 keV (36 %).

- Groupe de risque : 1 (très forte radiotoxicité) sauf ^{241}Pu : 2 (forte radiotoxicité).
- Activité maximale manipulable : 10^4 Bq sauf ^{241}Pu : 10^5 Bq - sous hotte ventilée - 10^3 Bq sauf ^{241}Pu : 10^4 Bq sur paillasse.
- Seuils d'exemption d'autorisation ASN :
 - 10^3 Bq (^{240}Pu) - 10^4 Bq (^{238}Pu ; ^{239}Pu ; ^{241}Am) - 10^5 Bq (^{241}Pu).
 - 1 Bq/g (^{238}Pu ; ^{239}Pu ; ^{240}Pu ; ^{241}Am) - 100 Bq/g (^{241}Pu).

Teneurs rencontrées usuellement dans l'environnement						
<ul style="list-style-type: none"> Présence principalement imputable aux essais atmosphériques et aux rejets d'effluents d'usines de retraitement. <ul style="list-style-type: none"> 5 à 2000 mBq/kg_{sec} dans les sols. 0,005 à 50 mBq/kg_{sec} dans les végétaux terrestres. 0,01 à 0,5 Bq/m³ dans la Seine (0,03 à 0,3 Bq/m³ dans le Bas-Rhône entre 1961 et 1998). 5 à 30 mBq/m³ en Manche ; 6 à 9 mBq/m³ en Atlantique. 						
Niveaux Maximaux Admissibles ¹⁹ (Euratom 2016/52)						
Somme des isotopes de Pu et d'éléments transplutoniciens à émission α, notamment ²³⁹ Pu et ²⁴¹ Am						
Aliments pour nourrissons	Produits laitiers	Autre denrées alimentaires	Liquides alimentaires			
1 Bq/kg _{frais}	20 Bq/kg _{frais}	80 Bq/kg _{frais}	20 Bq/kg _{frais}			
Techniques d'analyses "compatibles crise"						
Echantillon	Technique de séparation	Technique de mesure	Quantité Minimale (produit frais)	L.D. ²⁰ (temps de comptage)	Délai	Capacité ²¹
Liquides	Mesure rapide simultanée par couplage C. I. + ICP-MS ²³⁴ U, ²³⁵ U, ²³⁶ U, ²³⁸ U, ²³⁰ Th, ²³² Th, ²³⁹ Pu, ²⁴⁰ Pu, ²³⁷ Np, ²⁴¹ Am, ²⁴⁴ Cm (et ^{89/90} Sr). <i>La fraction ²³⁸Pu ne peut être caractérisée que par spectrométrie α complémentaire ou éventuellement par calcul à partir de la connaissance de l'activité Pu_{total}.</i>		500 mL	²³⁸ U : 2.10 ⁻⁴ Bq/L ²³⁶ U : 9.10 ⁻⁸ Bq/L ²³⁵ U : 2.10 ⁻⁴ Bq/L ²³⁴ U : 2.10 ⁻³ Bq/L ²³⁹ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴⁰ Pu : 0,1 mBq/L ²⁴¹ Pu : 1 Bq/L ²⁴¹ Am : 0,02 Bq/L (²³⁸ Pu : qqes mBq/L)	1 jour (+ 1 semaine pour ²³⁸Pu)	5 à 10/jour Orsay (mesures rapides) Le Vésinet (²³⁸ Pu par spectro α)
Solides			10 g	²³⁸ U : 0,2 Bq/kg ²³⁶ U : 3.10 ⁻⁴ Bq/kg ²³⁵ U : 0,2 Bq/kg ²³⁴ U : 2 Bq/kg ²³⁹ Pu : 0,4 Bq/kg ²⁴⁰ Pu : 1,5 Bq/kg ²⁴¹ Pu : 700 Bq/kg ²⁴¹ Am : 7 Bq/kg (²³⁸ Pu : qqes Bq/kg)		
Frottis			s.o.	²³⁸ U : 1.10 ⁻⁴ Bq ²³⁶ U : 2.10 ⁻⁷ Bq/kg ²³⁵ U : 1.10 ⁻⁴ Bq ²³⁴ U : 1.10 ⁻³ Bq		
Tous types	Mesures γ		500 ml ou g	10 000 Bq/L ou kg _{frais}	1 jour	
Spécificités des méthodes de mesure						

¹⁹ Le niveau applicable aux produits concentrés ou séchés est calculé sur la base du produit reconstitué prêt à la consommation.

²⁰ Il est rappelé que pour les mesures d'activité (donc hors ICP-MS) une réduction du temps de comptage d'un facteur 4 n'augmente la limite de détection que d'un facteur 2.

²¹ Les capacités s'entendent pour un déploiement des moyens du laboratoire exclusivement au type d'analyse évoqué.

- $^{238,239,240}\text{Pu}$ sont mesurés dans les échantillons de l'environnement par spectrométrie α , obligatoirement précédée d'une séparation radiochimique. LD de l'ordre de 0,1 mBq/kg. La spectrométrie α ne permet pas la discrimination de ^{239}Pu et ^{240}Pu . Cette discrimination est obtenue par spectrométrie de masse.
- Pour des échantillons ayant une charge en Pu suffisante par rapport au bruit de fond des radionucléides des familles naturelles (uranium et thorium), une mesure en scintillation liquide est possible avec une LD de l'ordre de 10 mBq pour ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et d'environ 50 mBq pour ^{241}Pu .
- Selon la provenance (donc l'isotopie) et l'âge du rejet en Pu, la mesure par spectrométrie γ de ^{241}Am (descendant de ^{241}Pu) peut fournir une information rapide sur l'ordre de grandeur des activités en Pu.
- Le SAME a développé une méthode et une instrumentation permettant, par couplage C. I. + ICP-MS ou CP (pour ^{90}Sr et ^{89}Sr), la mesure rapide et simultanée de $^{234, 235, 236, 238}\text{U}$, $^{230, 232}\text{Th}$, $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{237}Np , ^{241}Am , ^{244}Cm (et $^{89,90}\text{Sr}$). Cette technique ne permet pas la quantification de ^{238}Pu . Il peut être déduit, connaissant les autres isotopes, après une mesure de Pu_{total} ou faire l'objet d'analyses complémentaires par spectrométrie α .

Autres informations

- La définition de l'origine du plutonium repose souvent sur la détermination des rapports isotopiques :
 - $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 0,04 pour les retombées des essais militaires ;
 - de 0,2 à >1 pour les rejets industriels.
 - $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 0,18 pour les retombées des essais militaires ;
 - de l'ordre de 0,42 pour Tchernobyl.
 - $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$:
 - de l'ordre de 30 pour les usines de retraitement ;
 - de l'ordre de 16 pour des retombées de tests militaires.
- Les solutions aqueuses doivent être acidifiées pour éviter la précipitation.
- Des analyses Pu_{total} rapides sont possibles avec le système de type PERALS (extraction liquide-liquide spécifique avec scintillant puis mesure directe par SL). LD < 1 Bq/kg, délai 1 journée.
- Compte tenu de la faible énergie (de l'ordre de 45 keV) et de la faible intensité d'émission du rayonnement γ (de l'ordre de 0,04 % pour les raies les plus intenses) la spectrométrie γ ne permet pas de quantifier de faibles niveaux de Pu. En mesure directe des limites de détection de l'ordre de la dizaine de kBq/L ou par kg peuvent uniquement être envisagées. (*Calculé sur la base des LD pour ^{129}I : 10 Bq/L ou kg (30 keV – 37 %) sachant que pour Pu dans la même zone d'énergie (45 keV) l'intensité d'émission (0,04 %) est 1000 fois moins intense donc les LD sont à multiplier par 1000*).

Annexe 7. Stratégie de mesure dans l'environnement

Une fois les rejets terminés, la mesure joue un rôle important dans l'évaluation de la contamination de l'environnement. La mesure est essentielle, en complément des capacités de modélisation du CTC de l'IRSN, pour proposer un zonage post accidentel.

Dans les cas de rejets avec des émetteurs gamma, le déploiement de spectromètres γ embarqués dans des dispositifs terrestres ou aériens couplés aux mesures et prélèvements *in situ* permettront une première cartographie des territoires en quelques jours. Dans le cas d'un rejet d'émetteurs α pur (sans émission gamma ou X accessibles à la mesure *in situ*), la caractérisation des territoires sera plus longue, du fait des moyens humains et matériels disponibles limités.

Dans le cas d'un accident avec un rejet d'uranium, les isotopes 238, 235 et 234 de l'uranium pourraient être caractérisés par leurs photons γ . Toutefois, la quantification de l'U-238 à partir de son photon γ est rendue difficile du fait de sa faible énergie et de sa faible intensité d'émission ; il en est de même pour l'uranium-234. Dans l'hypothèse d'un état d'équilibre entre l'U-238 et ses descendants (uranium « âgé ») et leurs rejets conjoints, la quantification de l'U-238 sur le terrain pourrait être envisagée par des mesures directes ou par le biais de prélèvements, de ses descendants émetteurs γ (Pa-234m). L'uranium-235 est caractérisé par différents photons γ qui permettent d'envisager sa mesure sur le terrain (mesures directes ou par le biais de prélèvements) en particulier lors de rejet d'uranium-235 hautement enrichi. Ainsi, du fait des émissions γ de certains isotopes de l'uranium ou des descendants, des moyens mobiles de cartographie peuvent être envisagés (mesure du taux de comptage, mesure de débit d'équivalent de dose...), mais il est à noter que ces mesures directes des émissions γ ne seront pas forcément suffisantes : le débit d'équivalent de dose dû aux isotopes de l'uranium est plus faible que celui des radionucléides rejetés lors d'un accident d'un CNPE. Des mesures de contamination directe des émissions α , sur des surfaces sèches seront à prévoir. En cas de temps humide, la mesure directe de contamination surfacique n'étant pas possible, la caractérisation de la contamination des territoires prendra sensiblement plus de temps et nécessitera une stratégie de mesure distincte.

Les stratégies de mesure post-accidentelle en cas de rejet d'émetteurs α pur sont actuellement en cours de réflexion et nécessitent d'être testées. Cependant des points clefs sont identifiés ci-dessous.

7.1. Identification de la zone contaminée par temps sec en cas de rejet d'uranium

Par temps sec, l'identification de la zone contaminée sera réalisée par mesure directe à l'aide de contaminamètres en complément de mesure des émissions γ (taux de comptage, débit d'équivalent de dose). Afin de ne pas être tributaire du temps nécessaire pour trouver la tache de contamination et éventuellement engager des actions de protection sur les zones les plus habitées, il est proposé de contrôler en parallèle les zones urbaines pour déterminer si elles ont ou non été impactées par le rejet.

Les équipes déployées sur le terrain rechercheront la zone où le dépôt α total est supérieur à 0,4 Bq/cm². En termes de capacité, environ 5 points de mesure directe au contaminamètre pourraient être réalisés par heure et par équipe associés à des prélèvements par frottis si la mesure directe est supérieure au critère²² de 0,4 Bq/cm². Selon l'étendue de la tache de contamination, le temps d'identification minimal serait de 48 à 72 heures pour une zone comprise dans un rayon de 5 km autour de l'installation. Une fois la zone contaminée identifiée, la mesure par spectrométrie α de quelques frottis réalisés dans la zone, permettra de caractériser le spectre des radionucléides rejetés.

²² Ce critère est atteint avec une statistique de comptage suffisante avec une durée d'acquisition en mode intégration courte.

7.2. Identification de la zone contaminée par temps humide en cas de rejet d'uranium

Par temps humide le comptage direct de l'activité α globale est impossible. Une solution pourrait être de réaliser des frottis dans des lieux abrités et ouverts (auvent, préau ...) ; si le frottis est humide, il sera nécessaire de le sécher avant de le compter, ce qui conduit potentiellement à multiplier par deux les délais de restitution des résultats (2 points de mesure par heure environ). Une autre possibilité serait de réaliser des prélèvements d'eau dans des zones d'accumulation. Cependant, il sera seulement possible d'avoir une identification de présence ou non de contamination, la quantification de l'activité surfacique en Bq/m² réellement déposée étant impossible.

7.3. Mesure de végétaux

La mesure de végétaux sera réalisée uniquement dans les laboratoires fixes. Le choix de la technique de mesure (ICP-MS ou méthode rapide) se fera en fonction du type d'accident, des radionucléides rejetés.

Avec la méthode rapide mise en œuvre par l'IRSN, 5 à 10 échantillons pourront être analysés par jour après leur acheminement. Par la méthode de mesure par ICP-MS dans le cas d'un rejet des isotopes de l'uranium, plusieurs dizaines d'échantillons par jour pourront être analysés. La mesure par ICP-MS sera donc privilégiée en cas de rejet d'uranium.

Annexe 8. Comportement dans l'organisme et toxicité chez l'homme

8.1. Devenir de l'uranium après incorporation

8.1.1. Biocinétique de l'U

Les conditions redox, le pH, la composition ionique ou la présence de ligands particuliers (notamment ceux d'origine alimentaire) peuvent influencer sur la forme chimique de l'uranium dans l'organisme et favoriser ou non son absorption.

Il existe trois voies principales de contamination par l'uranium : l'ingestion, l'inhalation et les lésions transcutanées [A8-6][A8-19]. L'inhalation est une voie plus spécifique d'une exposition des travailleurs du nucléaire et des militaires. De petites particules d'U sous forme de poussière peuvent passer par le système respiratoire, pour atteindre la circulation sanguine [A8-95], puis les reins, où elles s'accumulent. L'U atteint également la circulation sanguine via des lésions cutanées [A8-74][A8-94]. Après ingestion, l'absorption de l'U varie de 0,1 à 2 %, selon l'espèce et la solubilité [A8-26][A8-47].

Quel que soit la voie d'exposition, l'U s'accumule préférentiellement dans le squelette et les reins, représentant 40 à 80 % de l'U absorbé par ingestion ou exposition cutanée, alors que l'inhalation entraîne des taux plus élevés de rétention totale (jusqu'à 95 %) [A8-49] [A8-52][A8-72].

La spéciation physico-chimique de l'uranium peut également être modifiée tout au long du tractus digestif, les publications [A8-70][A8-88] mettant en évidence la présence d'hydroxyde d'uranium, de formes hydroxylées et carbonatées et phosphatées comme formes chimiques prépondérantes. Les différentes formes solubles vont être disponibles pour l'absorption par le tractus intestinal. Une synthèse des différents complexes chimiques identifiés dans la salive, l'estomac et l'intestin soit sur la base de résultats expérimentaux, soit par modélisation est indiquée dans le Tableau A8 - 1 suivant.

Tableau A8 - 1 : Synthèse des principaux complexes chimiques identifiés dans la salive, l'estomac et l'intestin

	Salive	Estomac	Intestin
Ion uranyle		UO_2^{2+}	
Hydroxydes	$UO_2(OH)_2(aq)$ UO_2OH^+ $UO_2(OH)_3^-$		
Complexes chimiques majoritaires	Phosphates	$UO_2HPO_4(aq)$ $UO_2PO_4^-$ $UO_2H_2PO_4^+$ $UO_2(HPO_4)_2^{-2}$	$UO_2H_2PO_4^+$
	Carbonates	$UO_2CO_3(aq)$ $(UO_2)_2(OH)_3CO_3^-$	$UO_2(CO_3)_4^{6-}$ $UO_2(CO_3)_5^{8-}$
	Chlorures		UO_2Cl^+
	Protéines	α -amylase $UO_2[(COO)_2-Amy]^{2+}$?

8.1.2. Distribution, localisation tissulaire rénale, pulmonaire et cérébrale

Du fait de son rôle épurateur, le rein est l'organe principal d'exposition aux effets toxiques de nombreux métaux lourds dont l'uranium. En effet, l'uranium est filtré à travers la membrane glomérulaire et passe dans la lumière des néphrons, l'unité anatomique et fonctionnelle des reins. Il se déposerait ensuite principalement à la surface des cellules tubulaires rénales au niveau du tubule contourné proximal (TCP), dans les régions corticales et juxtaglomérulaire [A8-53].

L'U est distribué principalement dans les tubules contournés proximaux de la zone interne du cortex et dans la bande externe de la médulla [A8-48]. Au niveau cellulaire, l'U pénètre très rapidement (moins de 15 minutes) dans les cellules en culture, probablement par diffusion de formes non-précipitées [A8-36] [A8-86][A8-103]. L'absorption de l'U par les cellules épithéliales du tube proximal rénal se fait par diffusion ou par transport actif. L'U est absorbé par endocytose, probablement par liaison à la membrane plasmique de manière non spécifique [A8-28][A8-48][A8-52][A8-64].

Au niveau osseux, il a été démontré que les ions uranyles s'échangent avec le Ca^{2+} à la surface des cristaux minéraux osseux bien qu'ils ne participent pas à la formation des cristaux ou n'entrent pas dans les cristaux existants. La répartition initiale de l'uranium dans le squelette est similaire à celle du calcium. Des études sur les chiens ont montré que l'uranium pénètre dans le minéral osseux par diffusion et par enfouissement [A8-16]. L'U(VI) serait ainsi piégé dans la matrice osseuse par un échange de l'ion uranyle avec les ions calcium à la surface des cristaux minéraux d'apatite [A8-11][A8-78][A8-98].

Certaines études expérimentales montrent également un passage de l'uranium au niveau du système nerveux central. Le taux d'uranium dans le cerveau, notamment les bulbes olfactifs, est plus élevé lors d'une exposition par inhalation que par injection ou ingestion d'uranium. Cette distribution cérébrale de l'uranium dépend de la concentration de l'aérosol, du nombre d'exposition, de la taille des particules et de leur solubilité ; ainsi les particules nanométriques résident plus longtemps dans le cerveau que les particules micrométriques [A8-93]. Les mécanismes de transport de l'uranium vers le cerveau ont également été étudiés récemment et ont montré un transport le long des nerfs olfactifs après inhalation d' UO_4 [A8-45][A8-46].

8.2. Composantes radiologiques et chimiques de la toxicité de l'uranium.

L'U se trouve dans l'environnement sous plusieurs formes chimiques (oxydes, chlorures, fluorures et nitrates) et avec diverses compositions isotopiques (naturel, appauvri et enrichi). Ce sont les premiers facteurs qui influencent la toxicité et les effets néfastes de l'U. Cet élément qui appartient à la famille des actinides, présente une gamme d'états d'oxydation de +3 à +6, selon le potentiel redox du milieu. L'U(VI) est le plus soluble et forme des complexes sous forme d'ion uranyle UO_2^{2+} [A8-70]. On peut distinguer, selon la nomenclature de la CIPR, les formes rapidement solubles (« Fast », ex : UF_6 ..., nitrate d'uranyle) correspondant à une absorption rapide et complète du radionucléide avec une demi-vie de 30 min, lentement solubles « Slow », ex : UO_2) correspondant à une absorption de 1 % avec une demi-vie de 6 h et tous les intermédiaires (« Moderate », exemples diuranate d'ammonium, UF_4 , débris d'U appauvri d'origine militaire...), correspondant à une absorption de 20 % avec une demi-vie de 6 h [A8-20]. Dans la présentation sur les effets de l'uranium, les mélanges de formes chimiques de différentes solubilités seront considérés.

Les effets biologiques et sanitaires de l'uranium sont dus à ses propriétés chimiques et radiologiques, puisqu'il s'agit à la fois d'un métal lourd et d'un élément radioactif. La radiotoxicité de l'uranium varie en fonction du rapport isotopique considéré (ex : degré d'enrichissement, présence éventuelle de produits de fission) [A8-79][A8-108]. Le nombre de neutrons dans le noyau d'un atome d'un élément n'influence pas les propriétés chimiques de cet élément. Ainsi, quel que soit la composition isotopique de l'uranium, la forme chimique et donc la chimiotoxicité restera ainsi la même.

Il y a peu d'études qui comparent directement la radiotoxicité et la chimiotoxicité de l'uranium en utilisant les mêmes paramètres et les mêmes modèles expérimentaux. La séparation de ces effets est difficile car ils dépendent de la composition isotopique (^{235}U et ^{234}U plus radiotoxiques qu' ^{238}U) et parce que les particules alpha

et la chimiotoxicité agissent tous les deux dans un environnement intra ou inter-cellulaire proche [A8-6][A8-63][A8-102]. La toxicité de l'uranium est principalement due à des dommages chimiques aux cellules tubulaires rénales [A8-35][A8-52]. Cependant, des effets génotoxiques pouvant être attribués à la fois à la toxicité chimique et radiologique sont également rapportés par des études utilisant de l'uranium de composition isotopique différente [A8-35][A8-68].

La toxicité de l'uranium dépend également de la voie d'exposition, de sa forme physico-chimique, de la solubilité des composés d'uranium, de la durée d'exposition et de la taille des particules [A8-3][A8-6]. Par exemple, il a été constaté que l'exposition à des composés d'uranium insolubles altère principalement les voies respiratoires en raison de la rétention physique ou de ces composés dans les poumons, alors que l'exposition à des composés d'uranium solubles, non retenus dans les voies respiratoires, altère principalement les cellules tubulaires rénales. Par ailleurs, du fait de la rétention des composés insolubles dans les poumons, il est admis par la communauté scientifique que les effets pulmonaires sont principalement dus aux propriétés radiologiques de l'uranium alors que les effets rénaux de l'uranium sont attribués à ses propriétés chimiques.

En 2016, l'UNSCEAR a publié une synthèse complète de la littérature scientifique (toxicologique et épidémiologique sur les effets biologiques et sanitaires de l'uranium [A8-96] dont les principales conclusions sont résumées ci-dessous. L'UNSCEAR a rappelé que le rein était l'organe cible le plus sensible par rapport à la toxicité chimique de l'uranium et que des effets sur le métabolisme et la croissance osseuse pouvaient également être observés, suite toutefois à de fortes expositions. L'UNSCEAR rappelle que des effets biologiques sur le foie, les gonades, le système immunitaire et le système nerveux central ont également été observés chez des rongeurs, sans démonstration de lien avec des pathologies, à la date de publication du rapport. Les rapports internationaux de l'ATSDR en 2013 et de l'IARC en 2000 apportent quelques données complémentaires, notamment pour le risque de cancers du poumon, des os ou de leucémies qui sont étudiés en épidémiologie mais beaucoup plus rarement dans des études expérimentales chez l'animal [A8-6][A8-42].

8.3. Données toxicologiques/expérimentales

Il est connu que l'uranium peut induire des lésions tissulaires et un dysfonctionnement rénal, l'organe le plus sensible à l'intoxication par l'uranium, ceux-ci pouvant entraîner une maladie rénale aiguë ou chronique [A8-97]. Le stress oxydatif chronique, l'inflammation, les lésions de l'ADN et la mort cellulaire sont des facteurs importants qui contribuent à l'atteinte rénale que l'uranium peut induire [A8-35][A8-57].

Il est démontré que certaines formes chimiques de l'uranium sont plus toxiques que d'autres. Des travaux réalisés sur des cellules rénales en culture ont montré, dans les conditions expérimentales utilisées, que les formes carbonatées d'uranium $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^-$ et de citrate d'uranium UO_2Cit^- étaient les deux formes les plus toxiques pour les cellules [A8-16][A8-64]. À l'inverse, les formes $\text{UO}_2\text{Ca}_2(\text{CO}_3)_{3\text{aq}}$ et $\text{UO}_2\text{Ca}(\text{CO}_3)_3^-$ semblent être des formes non toxiques et non disponibles. La cytotoxicité de l'uranium est avérée pour les complexes de phosphate d'uranyle ($\text{UO}_2(\text{PO}_4)^-$ et $\text{UO}_2(\text{HPO}_4)_{\text{aq}}$), comme le montrent les travaux réalisés *in vitro* sur des cellules épithéliales tubulaires proximales (NRK-52E) [A8-15][A8-67].

La majorité des études décrites par la suite, et réalisées chez l'animal ou *in vitro*, sont effectuées lors d'exposition à des formes solubles de l'uranium (UO_2^{2+} ou U(VI)). Au niveau rénal, l'exposition aiguë à l'U déclenche des modifications de paramètres cliniques de la fonction rénale tels que la créatinine et l'urée sérique ou une diminution de la clairance de la créatinine, qui est un indicateur du taux de filtration glomérulaire [A8-27][A8-38]. L'altération de la fonction rénale chez les rongeurs est confirmée par des taux urinaires élevés de glucose, de protéines et d'électrolytes (sodium, potassium, magnésium, calcium, et phosphate inorganique), probablement en raison d'une diminution de la réabsorption, par les tubules proximaux [A8-9][A8-80] [A8-90]. Cependant, l'atteinte rénale associée à l'accumulation d'U dans les reins n'est pas toujours détectée après une exposition chronique à l'U [A8-69][A8-111], cela peut dépendre de la durée de l'exposition et de la dose [A8-22][A8-29][A8-76].

Au niveau osseux, l'exposition aiguë ou chronique à ce radionucléide affecte la formation osseuse dans des modèles animaux [A8-4] et des études *in vitro* récentes montrent qu'il pourrait favoriser la résorption osseuse [A8-32][A8-33]. Chez l'animal, une exposition chronique à l'uranium pourrait perturber le métabolisme de la vitamine D, une hormone synthétisée au niveau rénal qui favorise la minéralisation osseuse [A8-92].

Tel que montré dans la partie sur la biocinétique, l'uranium peut également pénétrer dans le système nerveux central après inhalation ou ingestion d'uranium même si les taux retrouvés restent très faibles comparativement aux organes cibles tels que l'os ou le rein. Cependant, des déficits cognitifs sont documentés dans la littérature après une exposition aiguë ou chronique à l'uranium chez le rongeur [A8-40][A8-55], ainsi que des modifications de l'activité locomotrice chez les animaux exposés à l'uranium par inhalation ou ingestion [A8-13][A8-66].

Par ailleurs, plusieurs études expérimentales décrivent l'U comme étant cancérigène, en fonction de la voie d'exposition et la solubilité du composé, mais le débat sur la question de savoir s'il répond aux critères de cancérogénicité (provoque, aggrave ou favorise le développement d'un cancer) notamment rénale reste ouvert [A8-5][A8-42][A8-91][A8-97]. Du fait du très faible taux d'incidence de tumeurs rénales chez l'animal comme chez l'Homme, les effectifs utilisés lors de précédentes études expérimentales ne permettaient probablement pas d'avoir une puissance statistique suffisante [A8-111][A8-24][A8-39]. Une augmentation du risque de cancer du poumon avait été observée dans une étude ancienne chez le chien exposé à des doses importantes (5,1 mg/m³) de dioxyde d'uranium pendant 5 ans par inhalation (6-7 Gy au poumon) mais aucune tumeur n'a été observée chez le singe pour une exposition similaire [A8-51]. Une autre étude réalisée chez des rats exposés par inhalation à des doses croissantes (8,4 ou 22 mg/m³) de minerai d'uranium pendant 65 semaines montre une augmentation de l'incidence de tumeurs pulmonaires malignes ou bénignes pour des doses cumulées de 0,8 à 1, 64 Gy [A8-65].

De nombreuses études expérimentales sur l'évaluation de la toxicité et de la cancérogénicité de l'uranium sont toujours en cours au Canada, en Chine et aux Etats-Unis afin de combler les lacunes de connaissances dans ce domaine. En France, le projet UKCAN (Uranium Kidney CANcerous effect in mice) a été développé à l'IRSN https://www.irsn.fr/fr/larecherche/formation_recherche/theses/_/th%c3%a8ses%202022/pages/san22-6-etude-effets-potentielle-cancerigenes-uranium-niveau-renal-aide-modeles-murins.aspx) afin d'apporter des connaissances scientifiques précises sur l'hypothèse d'une augmentation du risque de développement d'un cancer du rein à la suite d'une exposition à l'uranium, en lien avec des données épidémiologiques récentes [A8-30]. Il est mis en place à partir de modèles expérimentaux représentatifs de la cancérogénèse rénale humaine dont le développement cancéreux est suivi au cours du temps et il devrait donner ses premiers résultats en 2025.

8.4. Données épidémiologiques

Plusieurs synthèses de la littérature épidémiologique sur les pathologies associées à des expositions à l'uranium ont été publiées dans les années 2010 [A8-14][A8-91][A8-96][A8-108] [A8-84][A8-59][A8-25][A8-87].

L'UNSCEAR, dans un rapport de 2016 [A8-96] a jugé que les études épidémiologiques chez des vétérans exposés à l'uranium appauvri lors de différentes guerres n'ont pas rapporté à ce stade d'effet significatif au plan clinique, mais les très faibles effectifs de la majorité de ces études ne permettent pas de conclure définitivement. La plupart des études réalisées chez les travailleurs du cycle du combustible nucléaire présentées dans ce rapport étaient limitées par les difficultés à estimer les doses (au plan chimique comme radiologique) d'uranium incorporées sur le long terme. Une faible association entre l'exposition à l'uranium et risque de cancer du poumon lié à a été suggérée par plusieurs études, mais les résultats disponibles en 2016 n'ont pas été jugés suffisamment cohérents pour démontrer une association causale. Les résultats pour les autres tumeurs malignes et maladies non cancéreuses ont été jugés négatifs. Par ailleurs les études épidémiologiques sur l'exposition à l'uranium dans l'eau potable ont rapporté de légères altérations fonctionnelles des reins, mais dans des limites normales et donc de signification clinique minimale [A8-96][A8-97].

En 2018, la CIPR a également publié un rapport sur les effets sanitaires de l'exposition (uniquement professionnelle) à l'uranium [A8-91]. Ce rapport a de nouveau conclu à un possible effet de l'uranium sur le

risque de cancer du poumon sur la base de plusieurs études [A8-31][A8-37][A8-83], mais de manière trop imprécise pour pouvoir conclure à une relation de causalité. Les limites des études disponibles (études de petite taille, dose souvent non estimée) ont à nouveau été soulignées [A8-91].

Plus récemment, d'autres revues de la littérature sur les effets sanitaires de l'uranium ont également été publiées par différentes équipes de recherche [A8-25][A8-87][A8-59] [A8-77]. La synthèse ci-dessous intègre les résultats de ces précédentes revues, ainsi que de publications parues plus récemment. Cette synthèse sera présentée en distinguant les formes chimiques de l'uranium selon leur solubilité.

8.4.1. Formes rapidement solubles de l'uranium

La plupart des études épidémiologiques menées sur ces formes chimiques de l'uranium portait sur l'ingestion d'eau de boisson contenant de l'uranium d'origine naturelle, en population générale. La plupart d'entre elles n'avaient pas la capacité à mettre en évidence des associations avec des pathologies (même si ces liens avaient pu exister) en raison de limites méthodologiques diverses : manque de puissance statistique en raison de faibles tailles d'échantillon, recul temporel et/ou imprécision des mesures d'exposition [A8-14]. Elles ont rapporté de légères altérations fonctionnelles des reins de signification clinique minimale [A8-96]

Récemment, de nombreuses autres études épidémiologiques en population générale ont été menées, élargissant considérablement la gamme des états de santé étudiés, au-delà des organes cibles de l'uranium les plus classiquement étudiés (atteintes des reins, des os, poumons...). En particulier, un grand nombre d'analyses basées sur l'étude américaine National Health and Nutrition Examination Survey (NHANES), menée sur un échantillon représentatif de population générale des Etats-Unis, a été publiées depuis 2015. L'exposition à l'uranium dans cette cohorte a été estimée sur la base d'une mesure d'uranium urinaire dans un échantillon de plusieurs milliers de personnes (de taille variable selon les états de santé étudiés). Les concentrations d'uranium dans les urines ont été significativement associées au diabète [A8-60], notamment de type 2 [A8-89], aux maladies rénales [A8-73], à un aspect dentaire dégradé [A8-82], à l'arthrite rhumatoïde (bien que des modèles multi-polluants suspectent des influences prépondérantes du plomb et du cadmium sur cet effet) [A8-17], à la spondylarthrite ankylosante et la mobilité de la moelle épinière [A8-82], à l'asthme [A8-56]. Ces résultats originaux, très riches, doivent néanmoins à ce stade être interprétés avec précaution, car l'estimation de l'exposition dans la NHANES est basée sur un prélèvement urinaire unique reflétant certainement des apports alimentaires et hydriques en uranium naturel, mais ne reflétant pas nécessairement l'exposition chronique à l'uranium. Par ailleurs pour nombre d'états de santé étudiés dans la NHANES, aucune comparaison avec une autre étude n'est possible à ce jour, et une réplication de résultats dans d'autres populations serait utile pour conforter les observations réalisées. Ainsi, dans une autre étude américaine en population chez 1237 femmes, aucune association entre diabète de type 2 et concentration d'uranium dans l'urine n'a été retrouvée [A8-100]. En revanche, une association positive entre asthme et concentrations urinaires d'uranium a également été retrouvée dans une étude de cas/témoins (551 cas et autant de témoins) à Wuhan, en Chine [A8-41].

D'autres études en population générale ont par ailleurs examiné d'autres états de santé. Toujours à Wuhan, en Chine, les concentrations urinaires d'uranium de 8500 femmes enceintes ont été associées à des réductions de temps de gestation et de risques accrus de naissances avant terme [A8-107].

Dans la province de Shanxi, plusieurs études cas-témoins ont été menées. Le risque de naître avec une malformation de type fente orofaciale a été associé avec les concentrations d'uranium dans le cordon ombilical [A8-34] (84 cas/ 142 témoins) ou dans les cheveux [A8-101] (153 cas/601 témoins). Dans cette même province, l'exposition prénatale à l'uranium mesurée par dosage dans le placenta a par ailleurs été associée au risque de défaut de fermeture du tube neural [A8-106] (408 NTD cas / 593 témoins).

Une étude portant sur des données agrégées au niveau du comté réalisée en Bavière (Allemagne) a rapporté une association entre concentration d'eau dans les réseaux d'eau potable et taux d'incidence de tumeurs, de maladies du foie et de la thyroïde [A8-7]. Toutefois les limites méthodologiques de ce type d'étude (biais

d'agrégation dits encore de type « écologique », en anglais *ecological fallacy*) ne permettent en aucun cas de conclure à l'existence de relations causales.

De nombreuses études ont par ailleurs réalisé des prédictions de risques de cancers ou de toxicité rénale associés à la présence d'uranium dans l'eau de boisson, par pur calcul basé sur des combinaisons des concentrations d'uranium observées dans les eaux, des doses chimiques et radiologiques résultant de leur consommation, et de valeurs toxicologiques de référence disponibles (ex : [A8-71] [A8-81]).

En parallèle des études sur la population générale, des études ont également été réalisées dans des populations de travailleurs du nucléaire exposés à des formes solubles de l'uranium (par inhalation ou blessure), notamment dans des usines d'enrichissement d'uranium. Ces études ont porté sur les causes de décès des travailleurs. Une première étude a été réalisée en France, au sein d'une cohorte d'environ 4000 travailleurs. Elle n'a pas observé d'association significative entre exposition à l'uranium, estimée d'après une matrice emplois-expositions, et causes de décès [A8-109]. Une étude américaine plus large, incluant 30 000 travailleurs et ayant reconstitué les doses internes chroniques grâce à des mesures de prélèvements urinaires sur plusieurs décennies, a rapporté une association statistiquement significative entre exposition à l'uranium et mortalité par myélome multiple [A8-105]. La mortalité par cancer du rein, maladies rénales chroniques non cancéreuses, cancer de l'os [A8-104][A8-105], et maladies cardiaques ischémiques [A8-2] étaient positivement associées mais de manière non statistiquement significative. Ces associations ne sont toutefois pas suffisantes pour établir un lien de causalité.

8.4.2. Formes lentement/peu solubles de l'uranium

Les rares études épidémiologiques disponibles sur ces formes chimiques portent toutes sur les travailleurs de l'industrie nucléaire. Une première étude réalisée en 2011 chez 3000 travailleurs d'Orano de Pierrelatte (Drôme), basée sur une matrice emploi-expositions avait suggéré des risques accrus de cancer du poumon et de cancers lympho-hématopoïétiques chez les travailleurs exposés à de l'uranium de retraitement peu soluble, mais pas à l'uranium naturel peu soluble (ou à l'uranium plus rapidement soluble, qu'il soit naturel ou de retraitement) [A8-37]. Les effectifs de cas étaient toutefois relativement limités (53 cas de cancer du poumon et 21 cas de cancers lympho-hématopoïétiques dont 3 parmi les personnes exposées) et une confirmation sur la base d'analyses basées sur des estimations dosimétriques jugée nécessaire. Plus récemment, une étude réalisée chez 2000 autres travailleurs français impliqués dans la fabrication de combustible nucléaire à partir d'UO₂ enrichi a montré une association entre dose au poumon et accroissement de risque de cancer du poumon associé à cette exposition, après ajustement sur le tabagisme [A8-1]. Là encore, le nombre de cas limité (40) appelle à une interprétation prudente et à une confirmation par d'autres études.

8.4.3. Formes moyennement solubles et « Reste, inclassable, mix »

Uranium appauvri moyennement soluble

De nombreuses études ont été menées sur les effets sanitaires de l'uranium appauvri répandu par des opérations militaires (en Irak et dans les Balkans), que ce soit parmi les vétérans des forces armées ou les civils vivant sur des territoires contaminés par des fragments de matériel militaire [A8-96], dont la solubilité est estimée à « moyenne » [A8-20].

Une revue relativement récente couvrant largement des effets sanitaires de l'uranium appauvri [A8-25] a souligné, en dépit de l'observation de quelques signaux restant à confirmer (ex : associations avec le cancer du testicule en Croatie, le cancer du sein et les leucémies en Irak en population générale, avec la fonction rénale et le cancer du poumon et de la vessie dans certains groupes de vétérans...), le manque de cohérence des résultats des différentes études disponibles et le besoin de nouvelles études pour consolider les connaissances [A8-25].

Depuis, plusieurs autres études ont été publiées notamment au sein de populations de militaires norvégiens déployés au Kosovo (6,159 personnes)[A8-85], italiens déployés en Irak (981 personnes [A8-21], ainsi que sur les forces de l'OTAN déployées en Bosnie et au Kosovo, rassemblant 88 655 personnes suivies durant 28 ans par le biais d'une méta-analyse [A8-18]. Ces études rapportent globalement des déficits de mortalité par comparaison

avec la population générale, à interpréter avec prudence en raison d'un « effet du soldat sain », résultant de phénomènes de sélection à l'étape du recrutement dans les forces armées.

Parmi les vétérans étasuniens, le suivi épidémiologique semble se concentrer essentiellement sur un programme de recherche portant sur le « syndrome de la guerre du Golfe » [A8-12](recrutement en cours, 127 personnes recrutées en 2021) et sur une cohorte de quelques dizaines de vétérans fournissant des prélèvements biologiques depuis 25 ans [A8-62]. Le suivi de cette petite cohorte n'a pas rapporté pas d'effet sanitaire probant jusqu'à récemment [A8-62], mais ces constatations doivent être interprétées avec prudence compte tenu des très faibles effectifs de vétérans suivis et de la lente cinétique de migration des fragments d'uranium appauvri incorporés par blessures. Récemment, une dégradation de la densité minérale osseuse a d'ailleurs commencé à être observée dans le sous-groupe des vétérans les plus exposés [A8-61].

En population générale, une nouvelle étude de corrélation géographique menée au Kosovo suggère un lien entre densité d'impacts d'armes à l'uranium appauvri et incidence d'hémopathies malignes [A8-50]. Selon les auteurs, cette observation demande à être étayée par d'autres études afin de pouvoir conclure ou non à un lien de causalité.

Par ailleurs, une revue de la littérature récente s'est penchée sur les différentes études sur les effets de l'uranium appauvri menées en Irak. Il en résulte que des associations avec de nombreux états de santé ont été observées par ces études, mais que leurs résultats doivent à ce stade être interprétés avec prudence car les études réalisées à ce jour comportent d'important risques de biais, en particulier de confusion [A8-87].

Autres formes moyennement solubles de l'uranium, et mélanges de formes chimiques ou formes mal caractérisées

D'autres études épidémiologiques sur les formes chimiques moyennement solubles de l'uranium ou en mélange de formes chimiques de différente solubilité portent généralement sur les travailleurs de l'industrie nucléaire, impliqués dans des usines réalisant des activités multiples. Elles restent globalement peu informatives à ce stade. En effet la plupart d'entre elles sont de taille modeste et rapportent des résultats peu cohérents, possiblement en raison de leur taille (conduisant à des puissances statistiques limitées) mais peut-être aussi de mélanges de formes d'uranium variables et/ou insuffisamment caractérisés [A8-8][A8-110][A8-31][A8-10][A8-30][A8-83][A8-108].

Autour du site de traitement de l'uranium de Fernald aux USA (Ohio), des prévalences de maladies rénales chroniques et de la vessie, plus élevées que dans des études en population générale des USA, ont été observées [A8-54][A8-75]. Par ailleurs, des associations ont été mises en évidence entre exposition de riverains à l'uranium (principalement par inhalation) et risque de lupus érythémateux [A8-58], plus faibles taux de leucocytes et accroissement de pression artérielle systolique chez les femmes [A8-99]. La nature exacte des composés uranifères émis par ce site utilisé pour produire de l'uranium métal reste toutefois incertaine. Il semble qu'un mélange de composés de solubilité différente soit impliqué [A8-54].

Par ailleurs, à proximité d'anciennes mines situées sur les territoires des Indiens Navajo au Nouveau-Mexique, USA [A8-23], des marqueurs biologiques élevés d'auto-immunité ont été observés dans la population générale principalement exposée par l'eau de boisson, à un mélange de formes chimiques de l'uranium non spécifiées.

8.4.4. Conclusions concernant les connaissances apportées par les études épidémiologiques.

Les observations disponibles à ce jour ne permettent pas encore de conclure fermement à l'existence de pathologies associées à l'exposition chronique à l'uranium. Toutefois, les résultats observés sur les expositions à des formes rapidement solubles et insolubles (par inhalation), s'ils ne sont pas statistiquement significatifs à ce jour dans les quelques études solides existantes, semblent cohérents avec les possibles effets attendus compte tenu de la biocinétique de ces formes chimiques (effets rénaux et sur l'os pour les formes solubles, sur le poumon

pour les formes insolubles par inhalation). Plusieurs associations sont par ailleurs rapportées par des études, de manière ponctuelle avec des pathologies moins attendues a priori : myélomes multiples, diabète, pathologies de l'appareil circulatoire. Ces associations demandent à être explorées également dans davantage d'études concernant des populations différentes afin de pouvoir juger de la réplicabilité ou du moins de la cohérence de ces résultats. Le suivi des études de cohortes de bonne qualité (en particulier celles permettant une quantification de l'exposition à l'uranium) doit par ailleurs être poursuivi, leurs résultats étant susceptibles d'évolutions pour ce qui concerne la survenue de pathologies chroniques.

Par ailleurs, un important gain d'informations épidémiologiques est attendu dans un avenir relativement proche, concernant notamment les effets des formes peu solubles, mais aussi rapidement solubles, de l'uranium. Ceux-ci viendront notamment de l'étude internationale iPAUW (international Pooled Analysis of Uranium Workers), actuellement en cours et dont les premiers résultats sont attendus pour 2024. Cette étude analysera conjointement les données de cohortes de travailleurs de l'uranium de 6 pays (France, Allemagne, Royaume-Uni, Etats-Unis, Canada, Kazakhstan) <https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Organisation/equipes/radioprotection-homme/Lepid/Pages/projet-iPAUW.aspx#.Yy2rjXZBw2w>.

D'autres études en population générale pourront également apporter des informations nécessaires sur les effets de formes solubles (ex : uranium naturel *via* l'eau et l'alimentation). On constate actuellement un intérêt pour ces études et un fort regain de dynamisme de la recherche sur ces situations d'expositions. Enfin, le suivi continu des vétérans et populations générales exposés à l'uranium appauvri devrait devenir de plus en plus informatif au fur et à mesure de l'allongement des durées de suivi des études de cohorte présentant la meilleure qualité.

8.5. Références

- [A8-1] Ancelet S, Bouet S, Davesne E, Belloni M, Samson E, Jovanovic I, Leuraud K, Laurent O (2022) A Bayesian hierarchical model to account for lung dose uncertainty due to recordings below thresholds while studying the association between slowly soluble uranium exposure and lung cancer mortality. Paper presented at the ERPW, octobre 2022, Estoril, Portugal,
- [A8-2] Anderson, J. L., S. J. Bertke, et al. (2021). "Ischaemic heart and cerebrovascular disease mortality in uranium enrichment workers." *Occup Environ Med* 78(2): 105-111.
- [A8-3] Ansoborlo E, Prat O, Moisy P, Den Auwer C, Guilbaud P, Carriere M, Gouget B, Duffield J, Doizi D, Vercouter T, Moulin C, Moulin V (2006) Actinide speciation in relation to biological processes. *Biochimie* 88(11):1605-18. doi:10.1016/j.biochi.2006.06.011
- [A8-4] Arzuaga X, Gehlhaus M, Strong J (2015) Modes of action associated with uranium induced adverse effects in bone function and development. *Toxicology letters* 236(2):123-30. doi:10.1016/j.toxlet.2015.05.006
- [A8-5] Asic A, Kurtovic-Kozaric A, Besic L, Mehinovic L, Hasic A, Kozaric M, Hukic M, Marjanovic D (2017) Chemical toxicity and radioactivity of depleted uranium: The evidence from in vivo and in vitro studies. *Environmental research* 156:665-673. doi:10.1016/j.envres.2017.04.032
- [A8-6] ATSDR (2013) Agency for Toxic Substances and Disease Registry (ATSDR). Toxicological profile for Uranium.
- [A8-7] Banning, A. and M. Benfer (2017). "Drinking Water Uranium and Potential Health Effects in the German Federal State of Bavaria." *Int J Environ Res Public Health* 14(8).
- [A8-8] Boice, J. D., S. S. Cohen, et al. (2022). "Mortality among Tennessee Eastman Corporation (TEC) uranium processing workers, 1943-2019." *Int J Radiat Biol* 27;(1-21).
- [A8-9] Bontemps A, Conquet L, Elie C, Magneron V, Gloaguen C, Kereselidze D, Tack K, Barbier OC, Gueguen Y (2019) In Vivo Comparison of the Phenotypic Aspects and Molecular Mechanisms of Two Nephrotoxic Agents, Sodium Fluoride and Uranyl Nitrate. *International journal of environmental research and public health* 16(7). doi:10.3390/ijerph16071136

- [A8-10] Bouet, S., E. Davesne, et al. (2019). "Analysis of the association between ionizing radiation and mortality in uranium workers from five plants involved in the nuclear fuel production cycle in France." *Int Arch Occup Environ Health* 92(2): 249-262.
- [A8-11] Bourgeois D, Burt-Pichat B, Le Goff X, Garrevoet J, Tack P, Falkenberg G, Van Hoorebeke L, Vincze L, Denecke MA, Meyer D, Vidaud C, Boivin G (2015) Micro-distribution of uranium in bone after contamination: new insight into its mechanism of accumulation into bone tissue. *Analytical and bioanalytical chemistry* 407(22):6619-25. doi:10.1007/s00216-015-8835-7
- [A8-12] Brady CB, Robey I, Stein TD, Huber BR, Riley J, Abdul Rauf N, Spencer KR, Walt G, Adams L, Averill JG, Walker S, McKee AC, Thomson SP, Kowall NW (2021) The Department of Veterans Affairs Gulf War Veterans' Illnesses Biorepository: Supporting Research on Gulf War Veterans' Illnesses. *Brain sciences* 11(10). doi:10.3390/brainsci11101349
- [A8-13] Briner W, Murray J (2005) Effects of short-term and long-term depleted uranium exposure on open-field behavior and brain lipid oxidation in rats. *Neurotoxicol Teratol* 27(1):135-44
- [A8-14] Canu IG, Laurent O, Pires N, Laurier D, Dublineau I (2011) Health effects of naturally radioactive water ingestion: the need for enhanced studies. *Environmental health perspectives* 119(12):1676-80. doi:10.1289/ehp.1003224
- [A8-15] Carrière M, Khodja H, Avoscan L, Carrot F, Gouget B (2005) Uranium(VI) complexation in cell culture medium: Influence of speciation on Normal Rat Kidney (NRK-52E) cell accumulation. *Radiochimica Acta* 93(11):691-697
- [A8-16] Carriere M, Proux O, Milgram S, Thiebault C, Avoscan L, Barre N, Den Auwer C, Gouget B (2008) Transmission electron microscopic and X-ray absorption fine structure spectroscopic investigation of U repartition and speciation after accumulation in renal cells. *J Biol Inorg Chem* 13(5):655-62
- [A8-17] Chen, L., Q. Sun, et al. (2022). "Associations of blood and urinary heavy metals with rheumatoid arthritis risk among adults in NHANES, 1999-2018." *Chemosphere* 289: 133147.
- [A8-18] Cocco P (2022) Cancer incidence among the NATO peacekeeping forces in Bosnia and Kosovo: a systematic review and metanalysis. *La Medicina del lavoro* 113(1):e2022011. doi:10.23749/mdl.v113i1.12600
- [A8-19] Craft E, Abu-Qare A, Flaherty M, Garofolo M, Rincavage H, Abou-Donia M (2004) Depleted and natural uranium: chemistry and toxicological effects. *J Toxicol Environ Health B Crit Rev* 7(4):297-317
- [A8-20] Davesne E, Blanchardon E (2014) Physico-chemical characteristics of uranium compounds: a review. *International journal of radiation biology* 90(11):975-88. doi:10.3109/09553002.2014.886796
- [A8-21] De Angelis R, Piciocchi A, Bugani M, Rossi S, Lastilla M, Vento R, Autore A, Sebastiani N, Palomba S, Manno V, Battilomo S, Belmonte S, Pulliero A, Izzotti A (2022) Long term mortality and morbidity of Italian soldiers after deployment in Iraq as related to biomarkers assessment: Results of the SIGNUM study. *Environmental research* 211:113029. doi:10.1016/j.envres.2022.113029
- [A8-22] Dublineau I, Souidi M, Gueguen Y, Lestaevél P, Bertho JM, Manens L, Delissen O, Grison S, Paulard A, Monin A, Kern Y, Rouas C, Luyen J, Gourmelon P, Aigueperse J (2014) Unexpected lack of deleterious effects of uranium on physiological systems following a chronic oral intake in adult rat. *BioMed research international* 2014:181989. doi:10.1155/2014/181989
- [A8-23] Erdei E, Shuey C, Pacheco B, Cajero M, Lewis J, Rubin RL (2019) Elevated autoimmunity in residents living near abandoned uranium mine sites on the Navajo Nation. *J Autoimmun.* May;99:15-23. doi: 10.1016/j.jaut.2019.01.006. Epub 2019 Mar 14.
- [A8-24] Ellender, M., et al., Induction of osteosarcoma and acute myeloid leukaemia in CBA/H mice by the alpha-emitting nuclides, uranium-233, plutonium-239 and americium-241. *Int J Radiat Biol*, 2001. 77(1): p. 41-52.

- [A8-25] Faa A, Gerosa C, Fanni D, Floris G, Eyken PV, Lachowicz JI, Nurchi VM (2018) Depleted Uranium and Human Health. *Current medicinal chemistry* 25(1):49-64. doi:10.2174/0929867324666170426102343
- [A8-26] Frelon S, Houpert P, Lepetit D, Paquet F (2005) The chemical speciation of uranium in water does not influence its absorption from the gastrointestinal tract of rats. *Chemical research in toxicology* 18(7):1150-4. doi:10.1021/tx049662i
- [A8-27] Fukuda S, Iida H, Ikeda M, Yan X, Xie Y (2005) Toxicity of uranium and the removal effects of CBMIDA and EHBP in simulated wounds of rats. *Health physics* 89(1):81-8. doi:00004032-200507000-00007 [pii]
- [A8-28] Ghadially FN, Lalonde JM, Yang-Steppuhn S (1982) Uraniosomes produced in cultured rabbit kidney cells by uranyl acetate. *Virchows Arch B Cell Pathol Incl Mol Pathol* 39(1):21-30
- [A8-29] Gilman AP, Villeneuve DC, Secours VE, Yagminas AP, Tracy BL, Quinn JM, Valli VE, Willes RJ, Moss MA (1998) Uranyl nitrate: 28-day and 91-day toxicity studies in the Sprague-Dawley rat. *Toxicological sciences : an official journal of the Society of Toxicology* 41(1):117-28
- [A8-30] Golden AP, Ellis ED, Cohen SS, Mumma MT, Leggett RW, Wallace PW, Girardi D, Watkins JP, Shore RE, Boice JD (2019) Updated mortality analysis of the Mallinckrodt uranium processing workers, 1942-2012. *International journal of radiation biology*:1-21. doi:10.1080/09553002.2019.1569773
- [A8-31] Grellier J, Atkinson W, Berard P, Bingham D, Birchall A, Blanchardon E, Bull R, Guseva Canu I, Challeton-de Vathaire C, Cockerill R, Do MT, Engels H, Figuerola J, Foster A, Holmstock L, Hurtgen C, Laurier D, Puncher M, Riddell AE, Samson E, Thierry-Chef I, Tirmarche M, Vrijheid M, Cardis E (2017) Risk of Lung Cancer Mortality in Nuclear Workers from Internal Exposure to Alpha Particle-emitting Radionuclides. *Epidemiology* 28(5):675-684. doi:10.1097/EDE.0000000000000684
- [A8-32] Gritsaenko T, Pierrefite-Carle V, Creff G, Simoneau B, Hagege A, Farlay D, Pagnotta S, Orange F, Jaurand X, Auwer CD, Carle GF, Santucci-Darmanin S (2021) Low doses of uranium and osteoclastic bone resorption: key reciprocal effects evidenced using new in vitro biomimetic models of bone matrix. *Archives of toxicology* 95(3):1023-1037. doi:10.1007/s00204-020-02966-1
- [A8-33] Gritsaenko T, Pierrefite-Carle V, Lorivel T, Breuil V, Carle GF, Santucci-Darmanin S (2017) Natural uranium impairs the differentiation and the resorbing function of osteoclasts. *Biochimica et biophysica acta General subjects* 1861(4):715-726. doi:10.1016/j.bbagen.2017.01.008
- [A8-34] Guo, Y., L. Liu, et al. (2020). "Uranium concentration in umbilical cord may increase the risk for orofacial clefts." *Environ Res* **182**: 109103.
- [A8-35] Gueguen Y, Frerejacques M (2022) Review of Knowledge of Uranium-Induced Kidney Toxicity for the Development of an Adverse Outcome Pathway to Renal Impairment. *International journal of molecular sciences* 23(8). doi:10.3390/ijms23084397
- [A8-36] Gueguen Y, Suhard D, Poisson C, Manens L, Elie C, Landon G, Bouvier-Capely C, Rouas C, Benderitter M, Tessier C (2015) Low-concentration uranium enters the HepG2 cell nucleus rapidly and induces cell stress response. *Toxicol In Vitro* 30(1 Pt B):552-60. doi:10.1016/j.tiv.2015.09.004
- [A8-37] Guseva Canu I, Jacob S, Cardis E, Wild P, Caer S, Auriol B, Garsi JP, Tirmarche M, Laurier D (2011) Uranium carcinogenicity in humans might depend on the physical and chemical nature of uranium and its isotopic composition: results from pilot epidemiological study of French nuclear workers. *Cancer Causes Control* 22(11):1563-73. doi:10.1007/s10552-011-9833-5
- [A8-38] Haley DP, Bulger RE, Dobyan DC (1982) The long-term effects of uranyl nitrate on the structure and function of the rat kidney. *Virchows Arch B Cell Pathol Incl Mol Pathol* 41(1-2):181-92
- [A8-39] Hahn, F.F., R.A. Guilmette, and M.D. Hoover, Implanted depleted uranium fragments cause soft tissue sarcomas in the muscles of rats. *Environ Health Perspect*, 2002. 110(1): p. 51-9.

- [A8-40] Houpert P, Lestaevel P, Bussy C, Paquet F, Gourmelon P (2005) Enriched but not depleted uranium affects central nervous system in long-term exposed rat. *Neurotoxicology* 26(6):1015-20
- [A8-41] Huang, X., J. Xie, et al. (2016). "Association between Concentrations of Metals in Urine and Adult Asthma: A Case-Control Study in Wuhan, China." *PLoS One* 11(5): e0155818.
- [A8-42] IARC (2012) Internalized alpha-particle emitting radionuclides
- [A8-43] IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans 100D:241-284
- [A8-44] IARC, Working, Group, on, the, Evaluation, of, Carcinogenic, Risks, to, Humans (2012) INTERNALIZED α -PARTICLE EMITTING RADIONUCLIDES IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans Radiation. vol 100,
- [A8-45] Ibanez C, Suhard D, Elie C, Ebrahimian T, Lestaevel P, Roynette A, Dhieux-Lestaevel B, Gensdarmes F, Tack K, Tessier C (2019) Evaluation of the Nose-to-Brain Transport of Different Physicochemical Forms of Uranium after Exposure via Inhalation of a UO₄ Aerosol in the Rat. *Environmental health perspectives* 127(9):97010. doi:10.1289/EHP4927
- [A8-46] Ibanez C, Suhard D, Tessier C, Delissen O, Lestaevel P, Dublineau I, Gourmelon P (2014) Intranasal exposure to uranium results in direct transfer to the brain along olfactory nerve bundles. *Neuropathol Appl Neurobiol* 40(4):477-88. doi:10.1111/nan.12061
- [A8-47] Konietzka R (2015) Gastrointestinal absorption of uranium compounds--a review. *Regulatory toxicology and pharmacology* : RTP 71(1):125-33. doi:10.1016/j.yrtph.2014.08.012
- [A8-48] L'Azou B, Henge-Napoli MH, Minaro L, Mirto H, Barrouillet MP, Cambar J (2002) Effects of cadmium and uranium on some in vitro renal targets. *Cell Biol Toxicol* 18(5):329-40
- [A8-49] La Touche YD, Willis DL, Dawydiak OI (1987) Absorption and biokinetics of U in rats following an oral administration of uranyl nitrate solution. *Health physics* 53(2):147-62
- [A8-50] Latifi-Pupovci H, Selmonaj M, Ahmetaj-Shala B, Dushi M, Grajqevci V (2020) Incidence of haematological malignancies in Kosovo-A post "uranium war" concern. *PloS one* 15(5):e0232063. doi:10.1371/journal.pone.0232063
- [A8-51] Leach LJ, Yuile CL, Hodge HC, Sylvester GE, Wilson HB (1973) A five-year inhalation study with natural uranium dioxide (UO₂) dust. II. Postexposure retention and biologic effects in the monkey, dog and rat. *Health physics* 25(3):239-58
- [A8-52] Leggett RW (1989) The behavior and chemical toxicity of U in the kidney: a reassessment. *Health physics* 57(3):365-83
- [A8-53] Leggett RW, Pellmar TC (2003) The biokinetics of uranium migrating from embedded DU fragments. *Journal of environmental radioactivity* 64(2-3):205-25. doi:S0265-931X(02)00050-4 [pii]
- [A8-54] Leifer RZ, Jacob EM, Marschke SF, Praniti DM (2002) Atmospheric aerosol measurements of ²³⁸U and ²³²Th at Fernald, Ohio, and implications on inhalation dose calculations. *Health physics* 83(6):892-900. doi:10.1097/00004032-200212000-00017
- [A8-55] Lestaevel P, Bussy C, Paquet F, Dhieux B, Clarencon D, Houpert P, Gourmelon P (2005) Changes in sleep-wake cycle after chronic exposure to uranium in rats. *Neurotoxicol Teratol* 27(6):835-40
- [A8-56] Li, X., Y. Fan, et al. (2021). "Association between selected urinary heavy metals and asthma in adults: a retrospective cross-sectional study of the US National Health and Nutrition Examination Survey." *Environ Sci Pollut Res Int* 28(5): 5833-5844.
- [A8-57] Linares V, Belles M, Albina ML, Sirvent JJ, Sanchez DJ, Domingo JL (2006) Assessment of the pro-oxidant activity of uranium in kidney and testis of rats. *Toxicology letters* 167(2):152-61

- [A8-58] Lu-Fritts, P. Y., L. C. Kottyan, et al. (2014). "Association of systemic lupus erythematosus with uranium exposure in a community living near a uranium-processing plant: a nested case-control study." *Arthritis Rheumatol* 66(11): 3105-3112.
- [A8-59] Ma, M., R. Wang, et al. (2020). "Emerging health risks and underlying toxicological mechanisms of uranium contamination: Lessons from the past two decades." *Environ Int* 145: 106107.
- [A8-60] Menke, A., E. Guallar, et al. (2016). "Metals in Urine and Diabetes in U.S. Adults." *Diabetes* 65(1): 164-171.
- [A8-61] McDiarmid MA, Gaitens JM, Hines S, Cloeren M, Breyer R, Condon M, Oliver M, Roth T, Gucer P, Kaup B, Brown L, Brown CH, Dux M, Glick D, Lewin-Smith MR, Strathmann F, Xu H, Velez-Quinones MA, Streeten E (2021) Surveillance of Depleted Uranium-exposed Gulf War Veterans: More Evidence for Bone Effects. *Health physics* 120(6):671-682. doi:10.1097/HP.0000000000001395
- [A8-62] McDiarmid MA, Gaitens JM, Hines S, Condon M, Roth T, Oliver M, Gucer P, Brown L, Centeno JA, Dux M, Squibb KS (2017) The U.S. Department of Veterans' Affairs depleted uranium exposed cohort at 25 Years: Longitudinal surveillance results. *Environmental research* 152:175-184. doi:10.1016/j.envres.2016.10.016
- [A8-63] Miller AC, McClain D (2007) A review of depleted uranium biological effects: in vitro and in vivo studies. *Rev Environ Health* 22(1):75-89
- [A8-64] Mirto H, Henge-Napoli MH, Gibert R, Ansoborlo E, Fournier M, Cambar J (1999) Intracellular behaviour of uranium(VI) on renal epithelial cell in culture (LLC-PK1): influence of uranium speciation. *Toxicology letters* 104(3):249-56
- [A8-65] Mitchel RE, Jackson JS, Heinmiller B (1999) Inhaled uranium ore dust and lung cancer risk in rats. *Health physics* 76(2):145-55. doi:10.1097/00004032-199902000-00006
- [A8-66] Monleau M, Bussy C, Lestaevél P, Houpert P, Paquet F, Chazel V (2005) Bioaccumulation and behavioural effects of depleted uranium in rats exposed to repeated inhalations. *Neurosci Lett* 390(1):31-6
- [A8-67] Muller D, Houpert P, Cambar J, Henge-Napoli MH (2006) Role of the sodium-dependent phosphate co-transporters and of the phosphate complexes of uranyl in the cytotoxicity of uranium in LLC-PK1 cells. *Toxicology and applied pharmacology* 214(2):166-77. doi:S0041-008X(06)00004-4 [pii] 10.1016/j.taap.2005.12.016
- [A8-68] National Research Council (2008) Review of Toxicologic and Radiologic Risks to Military Personnel from Exposure to Depleted Uranium During and After Combat. National Academies Press:172 pages
- [A8-69] Ortega A, Domingo JL, Llobet JM, Tomas JM, Paternain JL (1989) Evaluation of the oral toxicity of uranium in a 4-week drinking-water study in rats. *Bull Environ Contam Toxicol* 42(6):935-41
- [A8-70] Osman AA, Geipel G, Barkleit A, Bernhard G (2015) Uranium(VI) Binding Forms in Selected Human Body Fluids: Thermodynamic Calculations versus Spectroscopic Measurements. *Chemical research in toxicology* 28(2):238-47. doi:10.1021/tx5004084
- [A8-71] Pandit P, Saini A, Chidambaram S, Kumar V, Panda B, Ramanathan AL, Sahu N, Singh AK, Mehra R (2022) Tracing geochemical sources and health risk assessment of uranium in groundwater of arid zone of India. *Scientific reports* 12(1):2286. doi:10.1038/s41598-022-05770-2
- [A8-72] Paquet F, Houpert P, Blanchardon E, Delissen O, Maubert C, Dhieux B, Moreels AM, Frelon S, Gourmelon P (2006) Accumulation and distribution of uranium in rats after chronic exposure by ingestion. *Health physics* 90(2):139-47. doi:00004032-200602000-00004 [pii]
- [A8-73] Park, R. M. and Y. An (2022). "Continuous NHANES survey data for environmental ambient and occupational hazard identification-feasibility and preliminary findings for osteoporosis and kidney disease." *J Occup Environ Hyg* 19(8): 489-499.

- [A8-74] Petitot F, Frelon S, Moreels AM, Claraz M, Delissen O, Tournalias E, Dhieux B, Maubert C, Paquet F (2007) Incorporation and distribution of uranium in rats after a contamination on intact or wounded skin. *Health physics* 92(5):464-74. doi:10.1097/01.HP.0000255659.86606.97
- [A8-75] Pinney SM, Freyberg RW, Levine GE, Brannen DE, Mark LS, Nasuta JM, Tebbe CD, Buckholz JM, Wones R (2003) Health effects in community residents near a uranium plant at Fernald, Ohio, USA. *Int J Occup Med Environ Health* 16(2):139-53
- [A8-76] Poisson C, Stefani J, Manens L, Delissen O, Suhard D, Tessier C, Dublineau I, Gueguen Y (2014) Chronic uranium exposure dose-dependently induces glutathione in rats without any nephrotoxicity. *Free Radic Res* 48(10):1218-31. doi:10.3109/10715762.2014.945441
- [A8-77] Rathod, A. M., S. Verpaele, et al. (2022). "Uranium: an overview of physicochemical properties, exposure assessment methodologies, and health effects of environmental and occupational exposure." *Environ Geochem Health*.
- [A8-78] Rodrigues G, Arruda-Neto JD, Pereira RM, Kleeb SR, Geraldo LP, Primi MC, Takayama L, Rodrigues TE, Cavalcante GT, Genofre GC, Semmler R, Nogueira GP, Fontes EM (2013) Uranium deposition in bones of Wistar rats associated with skeleton development. *Appl Radiat Isot* 82:105-10. doi:10.1016/j.apradiso.2013.07.033
- [A8-79] Rump A, Eder S, Lamkowski A, Hermann C, Abend M, Port M (2019) A quantitative comparison of the chemo- and radiotoxicity of uranium at different enrichment grades. *Toxicology letters* 313:159-168. doi:10.1016/j.toxlet.2019.07.004
- [A8-80] Sanchez DJ, Belles M, Albina ML, Sirvent JJ, Domingo JL (2001) Nephrotoxicity of simultaneous exposure to mercury and uranium in comparison to individual effects of these metals in rats. *Biol Trace Elem Res* 84(1-3):139-54. doi:10.1385/BTER:84:1-3:139
- [A8-81] Shin W, Oh J, Choung S, Cho BW, Lee KS, Yun U, Woo NC, Kim HK (2016) Distribution and potential health risk of groundwater uranium in Korea. *Chemosphere* 163:108-115. doi:10.1016/j.chemosphere.2016.08.021
- [A8-82] Shiue, I. (2015). "Relationship of environmental exposures and ankylosing spondylitis and spinal mobility: US NHAENS, 2009-2010." *Int J Environ Health Res* 25(3): 322-329.
- [A8-83] Silver SR, Bertke SJ, Hein MJ, Daniels RD, Fleming DA, Anderson JL, Pinney SM, Hornung RW, Tseng CY (2013) Mortality and ionising radiation exposures among workers employed at the Fernald Feed Materials Production Center (1951-1985). *Occupational and environmental medicine* 70(7):453-63. doi:10.1136/oemed-2012-100768
- [A8-84] Stammeler, L., A. Uhl, et al. (2016). "Renal Effects and Carcinogenicity of Occupational Exposure to Uranium: A Meta-Analysis." *Nephron Extra* 6(1): 1-11.
- [A8-85] Strand LA, Martinsen JI, Borud EK (2020) A 5-Year Continued Follow-up of Cancer Risk and All-Cause Mortality Among Norwegian Military Peacekeepers Deployed to Kosovo During 1999-2016. *Military medicine* 185(1-2):e239-e243. doi:10.1093/milmed/usz179
- [A8-86] Suhard D, Tessier C, Manens L, Rebiere F, Tack K, Agarande M, Gueguen Y (2018) Intracellular uranium distribution: Comparison of cryogenic fixation versus chemical fixation methods for SIMS analysis. *Microsc Res Tech*. doi:10.1002/jemt.23047
- [A8-87] Surdyk S, Itani M, Al-Lobaidy M, Kahale LA, Farha A, Dewachi O, Akl EA, Habib RR (2021) Weaponised uranium and adverse health outcomes in Iraq: a systematic review. *BMJ global health* 6(2). doi:10.1136/bmjgh-2020-004166
- [A8-88] Sutton M, Burastero SR (2004) Uranium(VI) solubility and speciation in simulated elemental human biological fluids. *Chemical research in toxicology* 17(11):1468-80. doi:10.1021/tx049878k

- [A8-89] Swayze, S., M. Rotondi, et al. (2021). "The Associations between Blood and Urinary Concentrations of Metal Metabolites, Obesity, Hypertension, Type 2 Diabetes, and Dyslipidemia among US Adults: NHANES 1999-2016." *J Environ Public Health* 2021: 2358060.
- [A8-90] Taulan M, Paquet F, Argiles A, Demaille J, Romey MC (2006) Comprehensive analysis of the renal transcriptional response to acute uranyl nitrate exposure. *BMC Genomics* 7:2. doi:1471-2164-7-2 [pii] 10.1186/1471-2164-7-2
- [A8-91] Tirmarche M (2018) Cancer risk following alpha-emitter exposure. *Annals of the ICRP* 47(3-4):115-125. doi:10.1177/0146645318756247
- [A8-92] Tissandie E, Gueguen Y, Lobaccaro JM, Grandcolas L, Voisin P, Aigueperse J, Gourmelon P, Souidi M (2007) In vivo effects of chronic contamination with depleted uranium on vitamin D(3) metabolism in rat. *Biochim Biophys Acta* 1770(2):266-72
- [A8-93] Tournier BB, Ibanez C, Tournalias E, Petitot F, Paquet F, Dublineau I, Lestaevel P (2021) Brain accumulation of inhaled uranium in the rat depends on aerosol concentration, exposure repetitions, particle size and solubility. *Toxicology letters* 351:10-17. doi:10.1016/j.toxlet.2021.08.002
- [A8-94] Tymen H, Gerasimo P, Hoffschir D (2000) Contamination and decontamination of rat and human skin with plutonium and uranium, studied with a Franz's chamber. *International journal of radiation biology* 76(10):1417-24. doi:10.1080/09553000050151709
- [A8-95] Ubios AM, Guglielmotti MB, Steimetz T, Cabrini RL (1991) Uranium inhibits bone formation in physiologic alveolar bone modeling and remodeling. *Environmental research* 54(1):17-23
- [A8-96] UNSCEAR (2016a) Sources, effects and risks of Ionizing Radiation. Annex D. Biological effects of selected internal emitters - uranium., United Nations, New York
- [A8-97] UNSCEAR (2016b) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and Effects of Ionizing Radiation. UNSCEAR 2016 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Annex D: biological effects of selected internal emitters-uranium.
- [A8-98] Valentin J (2002) Guide for the Practical Application of the ICRP Human Respiratory Tract Model:ICRP Supporting Guidance 3Approved by ICRP Committee 2 in October 2000. *Annals of the ICRP* 32(1-2):13-14. doi:10.1016/s0146-6453(03)00011-3
- [A8-99] Wagner SE, Burch JB, Bottai M, Pinney SM, Puett R, Porter D, Vena JE, Hebert JR (2010) Hypertension and hematologic parameters in a community near a uranium processing facility. *Environmental research* 110(8):786-97. doi:10.1016/j.envres.2010.09.004
- [A8-100] Wang, X., C. A. Karvonen-Gutierrez, et al. (2020). "Urinary metals and incident diabetes in midlife women: Study of Women's Health Across the Nation (SWAN)." *BMJ Open Diabetes Res Care* 8(1).
- [A8-101] Wei, Y., L. Jin, et al. (2019). "Levels of uranium and thorium in maternal scalp hair and risk of orofacial clefts in offspring." *J Environ Radioact* 204: 125-131.
- [A8-102] WHO (World Health Organization) (2001) Depleted uranium: sources, exposure and health effects. WHO Report WHO/SDE/PHE/01.1
- [A8-103] Yellowhair M, Romanotto MR, Stearns DM, Clark Lantz R (2018) Uranyl acetate induced DNA single strand breaks and AP sites in Chinese hamster ovary cells. *Toxicology and applied pharmacology* 349:29-38. doi:10.1016/j.taap.2018.04.022
- [A8-104] Yiin, J.H., et al., Dose-response relationships between internally-deposited uranium and select health outcomes in gaseous diffusion plant workers, 1948-2011. *Am J Ind Med*, 2018. 61(7): p. 605-614.
- [A8-105] Yiin, J. H., J. L. Anderson, et al. (2017). "Mortality in a combined cohort of uranium enrichment workers." *Am J Ind Med* 60(1): 96-108.

- [A8-106]Yin, S., T. Tian, et al. (2022). "Prenatal uranium exposure and risk for fetal neural tube defects: A case-control study in women living in a rural area of northern China." *J Hazard Mater* 424(Pt B): 127466.
- [A8-107]Zhang, W., W. Liu, et al. (2020). "Association of adverse birth outcomes with prenatal uranium exposure: A population-based cohort study." *Environ Int* 135: 105391.
- [A8-108]Zhivin S, Laurier D, Guseva Canu I (2014) Health effects of occupational exposure to uranium: do physicochemical properties matter? *International journal of radiation biology* 90(11):1104-13. doi:10.3109/09553002.2014.943849
- [A8-109]Zhivin, S., I. Guseva Canu, et al. (2016). "Mortality (1968-2008) in a French cohort of uranium enrichment workers potentially exposed to rapidly soluble uranium compounds." *Occup Environ Med* 73(3): 167-174.
- [A8-110]Zhivin, S., I. Guseva Canu, et al. (2018). "Circulatory disease in French nuclear fuel cycle workers chronically exposed to uranium: a nested case-control study." *Occup Environ Med* 75(4): 270-276.
- [A8-111]Zhu G, Xiang X, Chen X, Wang L, Hu H, Weng S (2008) Renal dysfunction induced by long-term exposure to depleted uranium in rats. *Archives of toxicology*

Annexe 9. Surveillance individuelle de l'exposition interne des personnes par les composés de l'uranium

9.1. Mesures de la contamination interne : les différents types d'examens

De façon générale, il existe deux types d'examens permettant de détecter et de quantifier une contamination interne chez un individu : la mesure des radionucléides par radiotoxicologie dans ses excréta (urines et/ou selles), et la mesure directe de l'activité contenue dans son organisme, par anthroporadiométrie.

Pour les composés de l'uranium, la surveillance du risque d'exposition interne se fait essentiellement par des mesures sur les excréta. L'uranium-235 et l'uranium-238 sont également détectables par anthroporadiométrie lorsque les activités incorporées sont suffisamment importantes.

9.1.1. Mesure dans les excréta

La mesure dans les excréta constitue la mesure de référence en cas de contamination interne par les isotopes de l'uranium. L'uranium-238 représente 99,275 % de la composition en masse de l'uranium naturel et 48,26 % de sa composition en activité alpha, l'uranium-235, 0,719 % de sa composition en masse et 2,25 % de sa composition en activité alpha, et l'uranium-234, 0,0057 % de sa composition en masse et 49,49 % de sa composition en activité alpha [A9-1][A9-2]. Ces radionucléides peuvent être identifiés et quantifiés dans les urines et les selles soit à partir de leur masse (mesures pondérales par ICP-MS, inductively coupled plasma mass spectrometry), soit à partir de leurs émissions radioactives (par spectrométrie alpha).

Ces différentes méthodes de mesures sont très sensibles et permettent de détecter des quantités d'uranium très faibles dans les excréta, de l'ordre du millibecquerel ou de la fraction de millibecquerel dans les urines ou les selles collectées pendant 24 heures.

En pratique les contaminations par l'uranium sont toujours dues à un mélange de ses trois principaux radioisotopes, à savoir les uraniums-234, 235 et 238, auxquels peuvent être associés d'autres isotopes comme l'uranium-233. La proportion en activité et en masse des trois principaux radioisotopes varie selon que l'on considère de l'uranium appauvri (~0,2 % d'²³⁵U en masse), naturel (0,7 % d'²³⁵U) ou enrichi (>0,7 % d'²³⁵U). La spectrométrie alpha et l'ICP-MS permettent d'identifier et de quantifier cette composition isotopique quel que soit l'isotope.

Lorsque l'uranium est incorporé sous sa forme naturelle, la mesure de l'uranium-238 seul par ICP-MS est le plus souvent suffisante, l'²³⁸U représentant 99,28 % de la composition en masse de l'uranium naturel et sa limite de détection par ICP-MS étant très basse, de l'ordre de quelques dizaines de nano-grammes par litre. En revanche, lorsque la contamination interne est due à des composés d'uranium enrichis ou appauvris, il est nécessaire de mesurer également l'uranium-234 et l'uranium-235 par spectrométrie alpha ou par ICP-MS.

9.1.2. Mesures anthroporadiométriques

Les mesures anthroporadiométriques ne détectent que les émissions photoniques gamma ou X et les limites de détection (LD) dépendent, pour un temps de mesure donné et une personne donnée, de l'énergie des rayonnements émis et de leur intensité.

L'uranium-235 peut être mesuré par anthroporadiométrie au niveau des poumons, en particulier après inhalation de composés sous forme relativement insoluble et en quantité suffisante, ou au niveau corps entier. L'uranium-238 peut également être détecté par le biais de la mesure de son descendant, le thorium-234.

Compte tenu des limites de détection de ces radioisotopes (de l'ordre de 10 Bq pour l'²³⁵U et de 50 Bq pour le ²³⁴Th descendant de l'²³⁸U au niveau pulmonaire), les mesures anthroporadiométriques ne permettent de

détecter, contrairement aux mesures radiotoxicologiques, que des contaminations internes relativement importantes.

9.2. Interprétation des résultats et estimation de la dose interne à partir des mesures

9.2.1. Prise en compte de l'apport alimentaire hors accident

L'uranium étant naturellement présent dans l'environnement et dans l'alimentation, il est retrouvé dans les urines et les selles de tous les individus qu'ils aient été ou non exposés à des contaminations internes professionnelles ou accidentelles. Il est donc nécessaire de disposer de valeurs de référence correspondant aux excrétions dues aux apports alimentaires en dehors de toute situation accidentelle pour une population ou un groupe de population donnée. La comparaison à ces valeurs permet de distinguer l'ingestion habituelle d'uranium naturel des contaminations secondaires à l'accident. En cas de contamination par de l'uranium enrichi, la composition isotopique dans les excréta apporte également des éléments permettant d'identifier et de quantifier une exposition accidentelle.

Des valeurs de référence pour les taux de base des excrétions d'uranium liés aux apports alimentaires hors accidents ont été publiées dans des articles et des documents nationaux et internationaux [A9-3][A9-4][A9-2].

En particulier deux études françaises ont mesuré la quantité d'uranium excrétée dans les urines [A9-5][A9-6]. L'étude la plus récente [A9-6] mentionne :

- chez l'adulte une concentration moyenne de $0,007 \mu\text{g.L}^{-1}$ (mesures chez 2419 sujets âgés de 18 à 74 ans) et une valeur au 95^{ème} percentile de $0,034 \mu\text{g.L}^{-1}$.
- chez les enfants (1052 sujets mesurés, âgés de 6 à 17 ans), une concentration moyenne similaire à celle retrouvée chez l'adulte ($0,007 \mu\text{g.L}^{-1}$) et une valeur au 95^{ème} percentile légèrement plus basse ($0,029 \mu\text{g.L}^{-1}$).

9.2.2. Calcul dosimétrique

Que ce soit par radiotoxicologie des excréta ou par anthroporadiométrie, les mesures individuelles de la contamination interne ne donnent pas directement des doses mais des activités présentes à un instant t dans l'organisme ou excrétées dans les urines ou les selles (cet instant t correspond à la date et à l'heure de la mesure par anthroporadiométrie ou à celles de la fin du recueil des excréta). À partir de l'activité mesurée, mais également des caractéristiques de la contamination (date de contamination aiguë ou période de contamination chronique, voie d'exposition, forme physico-chimique du contaminant) et de l'âge de l'individu contaminé, les activités incorporées et les doses reçues sont calculées à l'aide des modèles biocinétiques et dosimétriques de la Commission Internationale de Radioprotection (CIPR). Ces modèles prennent en compte les différentes voies d'incorporation des radionucléides dans le corps humain : par inhalation, par ingestion ou via une plaie contaminée.

À partir du modèle biocinétique proposé par la CIPR pour l'uranium [A9-7], les points essentiels suivant peuvent être retenus :

- Après inhalation, les formes les plus solubles, tels que l'hexafluorure d'uranium (UF_6) vont rapidement passer la barrière pulmonaire pour entrer dans le sang (demi-vie d'absorption dans le sang inférieure à 10 jours pendant les 30 jours suivant la contamination) alors que les formes moins solubles vont rester plus longtemps à ce niveau entraînant des doses au poumons plus élevées.
- Après ingestion, l'absorption de l'uranium dans le tube digestif est faible et dépend également de sa forme physico-chimique. Pour les formes relativement insolubles (par exemple l' UO_2 ou l' U_3O_8), la fraction absorbée retenue par la CIPR est de 0,002 alors qu'elle est de 0,02 pour les formes plus solubles.

- Une fois passé dans le sang, la CIPR considère que la biocinétique ne dépend plus de la solubilité initiale du composé incorporé. Selon le modèle, la majeure partie de l'activité est rapidement excrétée dans les urines (plus de 60 % au cours des premières 24 h après passage dans le sang). Le reste de l'activité se dépose dans le squelette (15 %), les reins (12 %) et dans une moindre mesure dans le foie (1,5 %) [A9-3]. À long terme l'uranium est essentiellement retenu dans le squelette.
- La voie d'excrétion (dans les urines ou dans les selles) dépend de la voie d'incorporation (par inhalation ou par ingestion), de la forme physico-chimique du composé et du délai depuis la contamination.

Pour l'estimation dosimétrique d'une exposition interne consécutives à un incident nucléaire ou radiologique, les valeurs moyennes d'excrétion dues à l'apport alimentaire habituel doivent être préalablement soustraites aux valeurs mesurées dans les urines ou les selles afin de ne prendre en compte que l'exposition accidentelle.

9.3. Éléments de stratégie de mesure en post-accidentel

Les mesures radiotoxicologiques sont les analyses les plus sensibles pour détecter les contaminations internes, même faibles, par l'uranium. Ces mesures peuvent être prescrites aussi bien après une contamination par inhalation que par ingestion. L'obtention des résultats nécessite cependant un délai minimum comprenant le temps nécessaire pour le recueil, la préparation et la mesure des échantillons. Ce délai minimum est de deux semaines pour les mesures par spectrométrie alpha et de deux jours pour les mesures pondérales (ICP-MS) après réception de l'échantillon par le laboratoire.

Le résultat après comptage anthroporadiométrique est rapidement disponible après la mesure mais celle-ci est moins sensible que les mesures radiotoxicologiques et ne s'applique qu'à des niveaux de contaminations internes plus importants.

Pour estimer les expositions internes post-accidentelles, c'est-à-dire les contaminations qui seraient dues au séjour dans un territoire impacté par les rejets une fois passés la phase d'urgence et le passage des rejets radioactifs, les mesures radiotoxicologiques sur les excréta seront a priori les plus adaptées compte tenu de la voie d'exposition potentielle prépondérante à savoir l'ingestion de produits contaminés. Les analyses urinaires seront à privilégier compte tenu de la grande sensibilité de cette mesure et de la relative facilité du recueil des urines. Dans tous les cas, le choix de la technique de la mesure sera à adapter à la composition isotopique des rejets (en particulier à l'éventuelle enrichissement de l'uranium) et aux circonstances potentielles de contamination.

La mesure positive d'un radioélément dans les excréta permet de détecter et de quantifier une contamination passée. Cependant, elle ne permet pas de déterminer par quelle voie (inhalation ou ingestion) ou à quel moment la personne s'est contaminée. En particulier, en phase post-accidentelle, une contamination interne détectée dans les urines pourra être due à une exposition lors de la phase d'urgence, par inhalation lors du passage des rejets contaminés dans l'atmosphère, ou à des contaminations par ingestion de produits contaminés après la fin de la situation d'urgence radiologique. C'est pourquoi il sera important, afin de distinguer ces deux situations de contamination potentielle, de disposer, pour les personnes susceptibles d'avoir été impactées par les rejets atmosphériques, de mesures individuelles réalisées au sortir de la phase d'urgence. Ces mesures seront également basées sur des recueils urinaires mais des mesures dans les selles pourraient être indiquées car elles permettent dans certains cas de dépister des expositions plus faibles que les mesures urinaires (en termes de doses détectables minimales), en particulier dans les jours suivant l'inhalation de composés relativement insolubles.

9.4. Capacités des moyens de mesure radiotoxicologique de l'IRSN

Le Laboratoire de Biologie Médicale et d'Anthroporadiométrie de l'IRSN dispose des moyens nécessaires pour mesurer les isotopes de l'uranium dans les excréta (urines et selles). Les trois principaux radioisotopes de l'uranium (uranium-234, 235 et 238) peuvent être mesurés par spectrométrie alpha ou par ICP-MS.

Le Tableau A9 - 1 présente les limites de détection moyennes obtenues dans les urines et les selles à partir des deux techniques de mesure. Les valeurs dans les selles sont données par gramme de cendre. Le poids moyen des cendres des selles journalières d'un adulte est de l'ordre de 4 grammes.

Tableau A9 - 1 : Limites de détection obtenues à l'IRSN pour la mesure dans les excréta des trois principaux radioisotopes de l'uranium (uranium-234, 235 et 238)

	Urines		Selles	
	spectrométrie alpha (mBq/L)	ICP-MS (ng/L)	spectrométrie alpha (mBq/g)	ICP-MS (mBq/g)
Uranium-234	1,4	0,009	0,92	0,008
Uranium-235	0,66	0,25	0,69	0,008
Uranium-238	0,93	30	0,88	0,008

Dans des conditions optimales (installations exclusivement utilisées pour ces mesures, personnel dédié), les premiers résultats peuvent être disponibles :

- pour les mesures ICP-MS : deux jours après réception des échantillons par le laboratoire,
- pour les mesures par spectrométrie alpha : deux semaines après réception des échantillons par le laboratoire, le temps moyen de préparation chimique puis de mesure des isotopes de l'uranium étant de 9 jours pour les urines et de 12 jours pour les selles.

Passé ce délai, le nombre maximum de résultats qui peuvent être rendus est de :

- 100 résultats par jour après mesures ICP-MS,
- 30 résultats tous les trois jours après mesure par alpha spectrométrie.

9.5. Traitements des contaminations par l'uranium

En cas de contamination cutanée, une décontamination sera réalisée par un lavage de la peau avec de l'eau et du savon ou par un produit spécifique tel que la crème Cevidra® au calixarène²³.

En cas de contamination interne par des quantités d'uranium justifiant la mise en route d'un traitement décorporant, les recommandations nationales et internationales proposent la prescription de bicarbonate de sodium en perfusion intra-veineuse (IV) lente [A9-9][A9-8]. Le but d'un traitement décorporant est d'accélérer l'excrétion des radionucléides et ainsi de diminuer leur fixation dans les organes et par conséquent les doses reçues par ceux-ci.

En pratique, l'administration de bicarbonate de sodium par voie IV se fait sur prescription et sous surveillance médicale. La décision de traiter est fonction :

- de la quantité incorporée et de l'âge de la personne contaminée qui conditionnent le risque de survenue d'effets sur la santé (par toxicité chimique et/ou radiologique) ;
- du délai passé depuis l'incorporation ;
- des effets secondaires et des contre-indications du traitement.

Une fois mis en route, le schéma et la durée du traitement sont adaptés en fonction des résultats des analyses radiotoxicologiques de surveillance.

²³ Crème lavante et décontaminante au calixarène sous brevet IRSN <https://www.cevidranuclear.com/fr/produit>

9.6. Références

- [A9-1] Fiche radionucléide environnement URANIUM NATUREL. Révisée en 2010.
https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/environnement/Documents/Uranium_VF.pdf
- [A9-2] NF ISO 16638-1, Radioprotection — Contrôle et dosimétrie interne des éléments spécifiques — Partie 1 : Inhalation de composés d'uranium
- [A9-3] Occupational intakes of radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137. Ann. ICRP 46(3/4).
- [A9-4] Castellani C.-M., Marsh J. W., Hurtgen C., Blanchardon E., Berard P., Giussani A., Lopez M. A. IDEAS guidelines (Version 2) for the estimation of committed doses from incorporation monitoring data, EURADOS Report 2013-01, Braunschweig, March 2013.
- [A9-5] Fréry N, Saoudi A, Garnier R, Zeghnoun A, Falq G. Exposition de la population française aux substances chimiques de l'environnement. Saint-Maurice : Institut de veille sanitaire ; 2011.
- [A9-6] Imprégnation de la population française par les métaux et métalloïdes. Programme national de biosurveillance. Esteban 2014-2016. Synthèse. Saint-Maurice : Santé publique France ; 2021 : 12 p
- [A9-7] Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 3. ICRP Publication 69. Ann. ICRP 25(1).
- [A9-8] Medical management of radiation injuries. International Atomic Energy Agency, Safety Reports Series no. 101, 2020.
- [A9-9] Guide national d'intervention médicale en cas d'événement nucléaire ou radiologique Guide national d'intervention médicale en cas d'événement nucléaire ou radiologique - 03/09/2021 - ASN
- [A9-10] Basic anatomical and physiological data for use in radiological protection: reference values. A report of age- and gender-related differences in the anatomical and physiological characteristics of reference individuals, ICRP Publication 89. Ann. ICRP. 2002, 32 (3-4)
- [A9-11] <https://www.santepubliquefrance.fr/determinants-de-sante/exposition-a-des-substances-chimiques/pesticides/documents/rapport-synthese/exposition-de-la-population-francaise-aux-substances-chimiques-de-l-environnement.-tome-1.-presentation-generale-de-l-etude.-metaux-et-metalloides>
- [A9-12] Mesure des émetteurs alpha dans les urines, les selles et prélèvements nasaux. SMERI/CRI/FRM/3908 indice 1

Annexe 10. Éléments sur l'évaluation de l'impact chimique

L'objectif de ce chapitre est de présenter les principes, définitions et enjeux de l'évaluation de l'impact des rejets de substances chimiques. Il a pour but d'introduire la démarche et les concepts mis en œuvre dans l'évaluation de l'impact chimique. Ces principes sont applicables hors situation d'urgence, en situation de fonctionnement normal. En l'absence de méthodologie dédiée, ils sont déclinés en situation post-accidentelle, selon le guide IRSN [A10-3]. Ces principes sont génériques à toutes les substances chimiques et ne sont pas spécifiques à un rejet d'uranium.

Une évaluation quantitative des risques sanitaires chimiques (EQRS) est une étude visant à caractériser et estimer, de manière qualitative et quantitative, l'impact des substances toxiques rejetées sur les individus potentiellement exposés. Ses principes et les méthodes d'évaluation associées sont présentés par l'INERIS dans le guide 2021 [A10-1].

10.1. Étapes d'une évaluation d'impact chimique

L'évaluation des risques chimiques est définie en quatre étapes :

- sélection des substances et identification des dangers ;
- évaluation des relations doses-réponse ;
- évaluation de l'exposition ;
- caractérisation du risque.

10.1.1. Sélection des substances et identification des dangers

La première étape a pour but d'établir la liste des substances sur lesquelles fonder l'évaluation. Elle consiste à sélectionner, à partir d'un inventaire exhaustif des substances rejetées, les substances d'intérêt susceptibles d'avoir des effets toxiques selon plusieurs critères présentés dans le guide INERIS [A10-1].

10.1.2. Évaluation des relations doses-réponse

La deuxième étape consiste à rechercher les propriétés toxicologiques des substances identifiées à la première étape. La relation dose-réponse est déterminée par la sélection de valeurs toxicologiques de référence (VTR) permettant de quantifier de manière appropriée les risques associés à l'exposition à ces substances. La toxicité d'une substance est sa capacité à provoquer des effets biologiques néfastes chez un organisme qui y est exposé. Ces effets peuvent être par exemple l'apparition de cancers, des mutations, ou des effets nocifs sur la reproduction.

Les substances chimiques sont classées dans l'une des deux catégories suivantes ou bien dans les deux selon le ou les effets produits sur l'organisme :

- les substances chimiques ayant un seuil d'effet, pour lesquelles une limite existe au-delà de laquelle les effets toxiques sont susceptibles d'apparaître ;
- les substances chimiques sans seuil d'effet, pour lesquelles il existe une probabilité d'apparition d'un effet toxique quelle que soit la dose ; les substances cancérigènes sont généralement classées dans cette famille.

La valeur toxicologique de référence (VTR) est une grandeur permettant de définir le lien entre une exposition à une substance chimique et un effet toxique ou une probabilité d'effet toxique sur un organisme. Il existe des VTR à la fois pour les substances à seuil et les substances sans seuil. **L'uranium est identifié comme une substance à seuil d'effet uniquement.**

La toxicité chimique de l'uranium est indépendante de l'enrichissement en ^{235}U et de l'isotopie. Elle dépend en revanche de la forme physico-chimique de la substance. Plusieurs formes chimiques de l'uranium sont identifiées comme solubles, dont notamment l'hexafluorure d'uranium (UF_6) et le fluorure d'uranyle (UO_2F_2).

Les VTR recommandées par l'INERIS [A10-7] pour les composés solubles sont retenues. Elles sont présentées dans le Tableau A10 - 1.

10.1.3. Évaluation de l'exposition

L'évaluation des risques sanitaires repose sur la définition de scénarios décrivant les modalités d'exposition des individus potentiellement impactés par les rejets. Ces scénarios doivent tenir compte de la nature de la pollution (ex : atmosphérique, liquide), des usages locaux (ex : fréquence d'exposition, présence de cultures agricoles), et de la sensibilité des populations potentiellement impactées (ex : présence d'enfants exposés à une ingestion involontaire de sol plus élevée).

Une analyse des incertitudes et du caractère potentiellement majorant du ou des scénarios d'expositions considérés doit être réalisée. **Dans le cadre d'une comparaison avec le risque radiologique, les mêmes scénarios d'exposition doivent être considérés.**

À partir des scénarios et voies d'expositions identifiés comme pertinents vis à vis de la situation (nature de la pollution, implantation des populations autour du lieu de rejet, usages locaux etc.), la troisième étape consiste à réaliser une identification des populations potentiellement impactées et des niveaux d'exposition. Dans le cadre d'une EQRS, l'évaluation des doses et concentration dans les milieux d'exposition est estimée par modélisation.

10.1.4. Caractérisation du risque

Sur la base des niveaux d'expositions calculés et de la caractérisation toxicologique des substances sélectionnées, une estimation du risque associé aux scénarios d'exposition est réalisée.

La caractérisation de l'impact des substances chimiques sur l'homme est réalisée sur la base d'indices de risque (IR) : quotients de danger (QD) pour les effets à seuil, excès de risque individuel (ERI) pour les effets sans seuil. Ces indices de risques sont calculés à partir des doses ou concentrations d'exposition et des VTR.

L'uranium étant défini comme étant une substance à seuil d'effet, les quotients de danger (QD), selon si l'exposition est due à l'ingestion ou l'inhalation sont évalués de la manière suivante [A10-1]:

$$QD_{inh} = \frac{CI}{VTR_{inh}} \quad QD_{ing} = \frac{DJE}{VTR_{ing}}$$

Avec :

QD_{inh} , QD_{ing} : quotients de danger respectivement pour l'inhalation et pour l'ingestion (-)

CI : concentration inhalée ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)

DJE : dose journalière d'exposition ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$)

VTR_{inh} , VTR_{ing} : valeurs toxicologiques de référence respectivement pour l'inhalation ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$) et pour l'ingestion ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$).

La circulaire du 9 août 2013 [A10-2] précise la valeur repère à utiliser pour les indices de risque. Elle est de 1 pour les QD, et de 10^{-5} pour les ERI. Ces valeurs sont appliquées substance par substance, et, le cas échéant, sommées pour l'ensemble des voies d'exposition pour un même type d'effet [A10-1].

Si les indices de risques sont inférieurs aux valeurs repères, les niveaux de risque sont considérés comme non préoccupants. L'apparition d'un effet paraît peu probable.

Si les indices de risques dépassent ces valeurs repères, les niveaux de risque sont considérés comme préoccupants. L'apparition d'un effet néfaste sur la santé ne peut être exclue.

10.2. Toxicité chimique de l'uranium et valeurs de référence associées

10.2.1. Valeurs toxicologiques de référence (VTR)

Une valeur toxicologique de référence (VTR) est une grandeur permettant de définir le lien entre une exposition à une substance chimique et un effet toxique ou une probabilité d'effet toxique sur un organisme.

Une VTR établit une relation entre :

- une dose ou concentration d'exposition et un effet toxique pour les substances à seuil d'effet ;
- une dose ou concentration d'exposition et une probabilité d'effet pour les substances sans seuil d'effet.

Pour les effets à seuil, une VTR désigne la concentration ou la dose en dessous de laquelle l'apparition d'un effet n'est pas attendue. Elle est exprimée en $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ (inhalation) ou $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$ (ingestion). Pour les effets sans seuil, une VTR désigne la probabilité supplémentaire d'apparition d'un effet rapporté à une unité d'exposition. Elle est dans ce cas aussi appelée excès de risque unitaire (ERU), et est exprimée en $(\text{mg}\cdot\text{m}^{-3})^{-1}$ ou $(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1})^{-1}$.

Une VTR est une valeur destinée à être appliquée à la population. Elle est indépendante d'une classe d'âge, et définie pour une voie d'exposition et un type d'exposition donnés. Pour une même substance, lorsqu'elles existent, une VTR aiguë est plus élevée que celle de la VTR subchronique, elle-même plus élevée que celle de la VTR chronique. Par conséquent, les doses journalières d'exposition chronique ne peuvent pas être automatiquement comparées à une VTR aiguë ou une VTR subchronique, sous peine de sous-estimer le risque. Pour information, les VTR associées aux substances sans seuil d'effet n'existent que pour les expositions chroniques.

Différentes VTR sont disponibles dans la littérature. La note ministérielle du 31 octobre 2014 [A10-3] encadre la sélection d'une VTR pour une évaluation. Cette sélection doit être réalisée parmi les valeurs recensées parmi huit organismes de référence (Anses, US-EPA, ATSDR, OMS/IPCS, Santé Canada, RIVM, OEHHA et EFSA) selon plusieurs critères, et selon la méthodologie présentée par l'INERIS dans son guide [A10-5].

Les VTR retenues pour une évaluation doivent être cohérentes avec le type de substance et d'exposition considérées.

L'INERIS met à disposition des évaluateurs un plateforme recensant les VTR disponibles [A10-6]. L'INERIS a publié en 2022 une synthèse des VTR à retenir pour différentes substances d'intérêt [A10-7]. Les VTR retenues par l'INERIS pour l'uranium sont présentées dans le Tableau A10 - 1. Pour l'uranium, des valeurs sont disponibles pour des expositions chroniques, subchroniques et aiguë, par voie orale et inhalation, pour des composés solubles et insolubles. L'uranium n'est pas classé comme chimiquement cancérigène pour l'homme. Par conséquent, seules des VTR à seuil sont recommandées. Les VTR ingestion sont recommandées pour les formes solubles uniquement.

La toxicité chimique de l'uranium est indépendante de l'isotopie et de l'enrichissement en ^{235}U . Plusieurs formes chimiques de l'uranium sont identifiées comme des solubles, dont notamment l'hexafluorure d'uranium (UF_6), le tétrafluorure d'uranium (UF_4) et le fluorure d'uranyle (UO_2F_2). L'INERIS précise qu'« en l'absence d'éléments démontrant la présence uniquement de composés insolubles, il est conseillé de retenir une approche protectrice

et d'utiliser les valeurs retenues pour les composés solubles. Une approche intermédiaire affinée peut s'envisager au cas par cas » [A10-8].

Tableau A10 - 1 : Valeurs toxicologiques de référence (VTR) recommandées par l'INERIS pour l'uranium

Exposition par inhalation				
Effets à seuil	subchronique	soluble	0,1 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	ATSDR, 2013 [A10-9]
		insoluble	2 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	ATSDR, 2013 [A10-9]
	chronique	soluble	0,04 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	ATSDR, 2013 [A10-9]
		insoluble	0,8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	ATSDR, 2013 [A10-9]
Exposition par ingestion				
Effets à seuil	aiguë	soluble	2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$	ATSDR, 2013 [A10-9]
	subchronique	soluble	0,2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$	ATSDR, 2013 [A10-9]
	chronique	soluble	0,2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{j}^{-1}$	ATSDR, 2013 [A10-9]

10.2.2. Valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP)

Pour les travailleurs, la valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP) représente le niveau maximal de concentration d'un polluant, au-delà duquel une exposition professionnelle présente un risque pour la santé humaine.

Il n'existe pas dans la réglementation française de VLEP pour l'uranium. Plusieurs organismes (OMS, OSHA, CIPR) retiennent comme limite pour l'exposition respiratoire aux formes solubles de l'uranium pour les travailleurs la valeur de 50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ [A10-11]. Cette valeur est applicable au cas d'une exposition chronique, de l'ordre de 8 heures par jour.

10.3. Références

- [A10-1] Évaluation de l'état des milieux et des risques sanitaires, démarche intégrée pour la gestion des émissions de substances chimiques par les installations classées, deuxième édition, INERIS, 200357-2563482-v1.0, 2021
- [A10-2] Circulaire du 09/08/13 relative à la démarche de prévention et de gestion des risques sanitaires des installations classées soumises à autorisation, bulletin officiel du MEDDE n° 16/2013 du 10 septembre 2013
- [A10-3] Guide méthodologique pour l'évaluation du risque écologique et sanitaire lié aux rejets de substances chimiques par les INB via les effluents produits en fonctionnement normal, Rapport IRSN/2019-00367, 2019
- [A10-4] Note d'information n° DGS/EA1/DGPR/2014/307 du 31/10/14 relative aux modalités de sélection des substances chimiques et de choix des valeurs toxicologiques de référence pour mener les évaluations des risques sanitaires dans le cadre des études d'impact et de la gestion des sites et sols pollués
- [A10-5] Évaluation de l'état des milieux et des risques sanitaires, démarche intégrée pour la gestion des émissions de substances chimiques par les installations classées, deuxième édition, INERIS, 200357-2563482-v1.0, 2021
- [A10-6] Portail INERIS <https://substances.ineris.fr/fr/>, consulté le 28/06/2022
- [A10-7] Bilan des choix de VTR disponibles sur le portail des substances chimiques de l'INERIS, Document INERIS 204119 – 2730827 v1.0, 2022

[A10-8] Uranium et ses composés, INERIS, DRC-18-163632-00981A, version 1, 2018

[A10-9] Toxicological profile for uranium, Agency for Toxic Substances and Disease Registry, ATSDR, 2013

[A10-10] Directives de qualité pour l'eau de boisson, OMS 2017

[A10-11] Fiche GT Dose n°3, Evaluation des risques chimiques pour les travailleurs : inhalation de l'uranium, IRSN, 2017

Annexe 11. Les voies d'exposition et leurs contributions

11.1. Scénarios considérés

En support aux travaux du CODIRPA, plusieurs scénarios accidentels ont été étudiés.

Dans le but d'estimer l'influence de l'enrichissement et du vieillissement de l'uranium sur les résultats radiologiques, cinq cas d'étude ont été retenus :

- uranium appauvri 0,2 % [A11-1];
- uranium enrichi 3,7 % [A11-3] ;
- uranium enrichi 3,7 % vieilli 1 an ;
- uranium enrichi 50 % [A11-4] ;
- uranium naturel [A11-2].

Les spectres associés à ces cas d'étude sont présentés sur le Tableau A11 - 1

Tableau A11 - 1 : Spectres isotopiques d'uranium types selon l'enrichissement en uranium 235

Enrichissement	% en masse				% en activité			
	U-234	U-235	U-236	U-238	U-234	U-235	U-236	U-238
appauvri 0,2 % [A11-1]	0,001	0,19	2,7 10 ⁻³	99,8	9,86	1,11	0,460	88,6
Naturel [A11-2]	0,006	0,711		99,3	48,70	2,26		49,0
enrichi 3,7 % [A11-3]	0,033	3,70	2,0 10 ⁻³	92,3	84,00	3,27	0,050	12,7
enrichi 50 % [A11-4]	0,520	50,0		49,5	96,30	3,22		0,5

Compte tenu du caractère à la fois radiotoxique et chimiotoxique de l'uranium, la démarche d'évaluation de l'impact des rejets doit considérer les impacts chimiques au même titre que les impacts radiologiques. Pour ces deux types d'impact, les résultats sont présentés à titre illustratif afin de mettre en regard les différentes voies d'exposition.

De l'uranium naturel enrichi (UNE) a été considéré pour l'ensemble de ces cas d'étude. L'uranium de retraitement (URT) n'a pas à ce stade été considéré. À l'exception du terme source enrichi à 3,7 % et vieilli 1 an, l'ensemble des termes sources sont composés d'uranium « frais », non vieilli.

11.2. Paramètres de calcul considérés

11.2.1. Inhalation des particules remises en suspension

Pour les évaluations radiotoxiques, la dose reçue via l'inhalation des particules remises en suspension est proportionnelle à la quantité de radionucléides présents dans l'air ambiant et inhalée par les personnes exposées. Les débits respiratoires des populations utilisés dans les outils sont habituellement issus de la publication 66 de la CIPR [A11-5], les budgets temps sont ceux habituellement utilisés dans les outils du centre de crise de l'IRSN et présentés dans le Tableau A11 - 2. Il s'agit d'un budget temps français moyen, ne prenant pas en compte les particularités liées aux différentes régions françaises.

Tableau A11 - 2 : Budget temps en (h/j)

	Nourrisson [0-1 an]	Enfant [1-7 ans]	Enfant [7-17 ans]	Adulte [>17ans]
Activité Grande Culture	0	0	0.67	1.33
Activité Prairie	0	0	0.67	1.33
Activité Intérieure	22	20	20	14
Activité Autre Extérieur	2	4	2	6
Activité Culture Maraîchère	0	0	0.67	1.33

Pour évaluer la quantité d'uranium déposée remise en suspension il convient d'utiliser un facteur dit « coefficient de remise en suspension ». Ce coefficient K (en m^{-1}) est le rapport entre l'activité volumique de l'air due aux poussières en suspension ($Bq.m^{-3}$) et la densité de dépôt sur la surface considérée ($Bq.m^{-2}$). Dans les outils de crise de l'IRSN, ce paramètre est supposé indépendant du temps et du radionucléide. Une valeur $K = 10^{-7} m^{-1}$ a été retenue. Toutefois ce paramètre est entaché d'incertitude ; des modèles considèrent que le coefficient K diminue avec le temps, et de plus, les valeurs issues de l'expérience couvrent une très large gamme de valeurs, de 10^{-10} à $10^{-4} m^{-1}$, dépendamment des conditions (vent, humidité, type de sol, activité humaine...).

11.2.2. Ingestion involontaire de sol et de poussières

L'ingestion de poussières est souvent assimilée à celle de sol [A11-6].

L'ingestion involontaire de sol et poussière par une population vivant en territoire contaminé peut être prise en compte de façon simple en faisant l'hypothèse d'une quantité forfaitaire de référence ingérée quotidiennement.

Dans la simulation présentée des quantités de sol et poussière ingérées de $150 mg.j^{-1}$ en-dessous de 12 ans d'âge et de $50 mg.j^{-1}$ au-delà ont été considérées.

L'évaluation de la dose par ingestion involontaire de sol et de poussières est directement proportionnelle au niveau d'activité du sol. Cette activité est un rapport entre le dépôt, la densité du sol et la profondeur d'homogénéisation du dépôt. Même si l'uranium migre plus profondément dans le sol en conditions naturelles que le plutonium, ce dernier paramètre est difficilement quantifiable a priori car il dépendra de la manipulation éventuelle du sol. Dans le cadre de cette étude une hauteur d'homogénéisation de 0,5 mm a été utilisée.

11.2.3. Ingestion de denrées alimentaires contaminées

Pour évaluer les risques liés à l'ingestion de denrées alimentaires contaminées, La ration alimentaire en $kg.j^{-1}$, pour chaque population ainsi que le degré d'autarcie (identique pour toutes les populations) sont présentés dans le tableau 2. La ration alimentaire utilisée dans les outils de crise se base sur une étude INSEE de 1991 [A11-7]. Cette étude fournit pour un adulte la consommation annuelle de denrées alimentaires en distinguant la part achetée de la part autoconsommée. Pour établir les rations alimentaires des enfants, un article de Boggio & al. [A11-8] spécifiant les apports énergétiques quotidiens en fonction de l'âge a été utilisé.

Sur la base de ces deux études, un régime alimentaire pour toutes les classes d'âges de la CIPR a été défini en se basant sur la catégorie « population agricole, commune rurale » et en regroupant les différents types de denrées dans des classes génériques (légumes feuilles, légumes racines, fruits...).

11.3. Évaluation de l'impact radiologique

Les résultats des évaluations dosimétriques pour l'adulte et l'enfant de 1-2 ans sont présentés pour chaque voie d'exposition dans le Tableau A11 - 3 et le Tableau A11 - 4. Ces résultats sont présentés à 1000 m du point de rejet.

Tableau A11 - 3 : Doses efficaces annuelles susceptibles d'être reçues les deux premières années suivant la fin des rejets pour l'enfant de 1-2 ans ($\mu\text{Sv.an}^{-1}$)

		Ingestion de denrées alimentaires	Ingestion involontaire de sol et de poussière	Inhalation par remise en suspension	Exposition externe	Dose totale
Enrichi 3,7 %	1ère année	254	46	17	0,2	317
	2ème année	37	46	17	0,2	100
Appauvri 0,2 %	1ère année	37	7	2	0,01	46
	2ème année	5	7	2	0,01	14
Enrichi 3,7 % vieilli	1ère année	253	46	17	0,2	316
	2ème année	37	46	17	0,2	100
Enrichi 50 %	1ère année	3542	647	234	2,5	4426
	2ème année	519	647	234	2,5	1402
Naturel	1ère année	67	12	4	0,04	84
	2ème année	10	12	4	0,04	26

Tableau A11 - 4 : Doses susceptibles d'être reçues les deux premières années suivant la fin des rejets pour l'adulte ($\mu\text{Sv.an}^{-1}$)

		Ingestion de denrées alimentaires	Ingestion involontaire de sol et de poussière	Inhalation par remise en suspension	Exposition externe	Dose totale
Enrichi 3,7 %	1ère année	208	6	14	0,3	228
	2ème année	56	6	14	0,3	77
Appauvri 0,2 %	1ère année	30	1	2	< 0,1	33
	2ème année	8	1	2	< 0,1	11
Enrichi 3,7 % vieilli	1ère année	207	6	14	0,3	228
	2ème année	56	6	14	0,3	76
Enrichi 50 %	1ère année	2900	81	204	4,6	3190
	2ème année	781	81	204	4,3	1071
Naturel	1ère année	55	2	4	< 0,1	60
	2ème année	15	2	4	< 0,1	20

Il apparait dans les résultats de cette étude que, concernant la sensibilité des résultats à la composition de rejet :

- Les résultats de dose calculés pour l'uranium appauvri à 0,2 % et l'uranium naturel sont inférieurs d'un facteur 6 environ et d'un facteur 4 environ à ceux calculés pour un uranium enrichi à 3,7 %. L'enrichissement de l'uranium à des niveaux de type de réacteur de puissance apparait donc avoir un impact significatif sur les résultats de dose ;

- Les résultats de doses calculés pour l'uranium enrichi à 3,7 % vieilli sont très proches de ceux calculés pour l'uranium frais. Le vieillissement de l'uranium, s'il a un impact sur l'activité totale, notamment sur l'apparition d'émetteurs beta gamma parmi les descendants, apparaît avoir un impact très limité sur la dose efficace reçue ;
- Les résultats calculés pour l'uranium enrichi à 50 % sont pour leur part supérieurs de plus d'un ordre de grandeur à ceux calculés pour l'uranium enrichi à 3,7 %.

L'analyse détaillée des résultats de dose montre que, pour les cas uranium enrichis utilisés (3,7 % frais et vieilli, 50 %), l'isotope ^{234}U est le principal contributeur à la dose, et ce quelle que soit la voie d'exposition considérée. Les contributions de ^{238}U et ^{234}U pour le cas d'uranium naturel sont proches. Plus que l'enrichissement en ^{235}U , c'est donc l'augmentation de la teneur en ^{234}U qui provoque une augmentation de la dose efficace avec le taux d'enrichissement. En raison de son activité massique importante (près de 4 ordres de grandeur supérieure à celles des isotopes ^{235}U et ^{238}U), une augmentation même faible de la teneur massique en ^{234}U provoque une augmentation conséquente de l'activité associée à ^{234}U . Son activité relative représente ainsi 85 % de l'activité totale du spectre uranium enrichi 3,7 %, et près de 96 % du spectre uranium enrichi 50 %. Les coefficients de dose de ces isotopes étant très proches, une augmentation de la teneur massique en isotope 234 a pour conséquence une augmentation importante de la dose totale reçue.

Les contributions respectives des voies d'expositions sont semblables pour l'ensemble des scénarios de rejet considérés. Concernant ces contributions, l'évaluation réalisée montre que :

- l'ingestion de denrées alimentaires est la voie d'exposition prépondérante l'année suivant les rejets avec une contribution d'environ 80 à 90 % à la dose efficace totale selon la population concernée. Cette voie d'exposition reste prépondérante pour l'adulte la deuxième année. Elle est du même ordre de grandeur que l'exposition par ingestion de sol pour l'enfant de 1 an à 2 ans la deuxième année ;
- les doses reçues par ingestion involontaire de sol et de poussières et par inhalation des particules remises en suspension sont quasi constantes au cours du temps. En effet, la décroissance radioactive étant négligeable à l'échelle des deux premières années et l'uranium restant dans les premiers centimètres du sol, nos modèles aujourd'hui considèrent une disponibilité identique quelle que soit l'année ;
- l'ingestion de sol par inadvertance est une voie d'exposition secondaire pour l'adulte ; pour l'enfant, elle est secondaire la première année suivant les rejets, mais représente la moitié de la dose totale environ la deuxième année suivant les rejets ;
- l'inhalation par remise en suspension est une voie d'exposition secondaire pour l'ensemble des classes d'âge et pour les deux années qui suivent les rejets ;
- l'exposition externe aux dépôts est négligeable par rapport aux autres voies d'exposition.

Les Tableau A11 - 5 et Tableau A11 - 6 comparent les doses susceptibles d'être reçues pendant la phase d'urgence à celles évaluées pour les deux années suivantes pour l'enfant 1 an à 2 ans et l'adulte.

Pour les scénarios considérés, les doses susceptibles d'être reçues pendant la phase post-accidentelle, c'est-à-dire après la fin des rejets, sont inférieures à celles reçues durant la phase d'urgence. Elles restent cependant du même ordre de grandeur la première année suivant les rejets. La dose efficace totale reçue la deuxième année est inférieure d'un facteur 3 environ à celle reçue la première année suivant les rejets.

Tableau A11 - 5 : Doses efficaces reçues pour la phase d'urgence et la phase post-accidentelle pour l'enfant de 1 an à 2 ans

	Exposition au panache (μSv)	Dose efficace totale 1 ^{ère} année ($\mu\text{Sv.an}^{-1}$)	Dose efficace totale 2 ^{ème} année ($\mu\text{Sv.an}^{-1}$)
Enrichi 3,7 %	554	317	100
Appauvri 0,2 %	76	46	15
Enrichi 3,7 % vieilli	553	316	100
Enrichi 50 %	7799	4475	1451
Naturel	143	84	26

Tableau A11 - 6 : Doses efficaces reçues pour la phase d'urgence et la phase post-accidentelle pour l'adulte

	Exposition au panache (μSv)	Dose efficace totale 1 ^{ère} année ($\mu\text{Sv.an}^{-1}$)	Dose efficace totale 2 ^{ème} année ($\mu\text{Sv.an}^{-1}$)
Enrichi 3,7 %	749	228	77
Appauvri 0,2 %	104	33	11
Enrichi 3,7 % vieilli	747	228	76
Enrichi 50 %	10576	3200	1081
Naturel	191	60	20

11.4. Évaluation de l'impact chimique

La toxicité chimique de l'uranium est indépendante de sa composition isotopique et de son enrichissement en ^{235}U . Elle est uniquement dépendante de la masse totale d'uranium rejetée, identique pour l'ensemble des scénarios. Par conséquent, et indépendamment de leur composition radiologique, les résultats de l'évaluation chimique sont identiques pour l'ensemble des cas.

L'évaluation des conséquences en situation post-accidentelle diffère de celle relative à une contamination chronique : l'individu est exposé continûment sur une période de plusieurs années, mais à des concentrations d'exposition potentiellement significativement variables au cours du temps. Le calcul des niveaux d'exposition nécessite alors, pour certains d'entre eux, une approche spécifique. C'est le cas pour la contamination des denrées alimentaires consommées par les individus.

Pour le cas de l'uranium, le calcul des expositions directement associées au sol (ingestion involontaire de sol et inhalation par remise en suspension) peut être assimilé à celui d'une exposition chronique à un flux constant. En effet, en l'absence de migration significative de l'uranium vers les horizons sous-jacents du sol, et compte tenu des demi-vies très longues des isotopes de l'uranium, la contamination de la surface du sol peut être considérée, en première approche, comme constante sur les durées considérées dans cette étude (2 ans). Le calcul des doses et concentrations d'exposition associés ne présente par conséquent par de spécificité particulière par rapport à la méthodologie radiologique, il est possible de calculer des indices de risques durant la première et la deuxième année.

En situation post-accidentelle, la migration des polluants dans la chaîne alimentaire suit un conduit à des concentrations dans les denrées qui ne sont pas à l'équilibre. Du fait des cycles cultureux, des calendriers agricoles et du transfert entre les différentes matrices, les concentrations d'uranium dans les denrées varient parfois de

plusieurs ordres de grandeur durant les mois suivant l'accident et ne peuvent pas être considérées comme constantes. Ces variations ont pour conséquence une variation importante des DJE dans le temps.

Pour les scénarios de rejet considérés, l'évolution de la concentration en uranium dans les denrées et de la DJE associée à l'ingestion de ces denrées pour l'enfant de 1 an à 2 ans sont présentées sur la Figure A11 - 1 et la Figure A11 - 2 respectivement.

La masse d'uranium rejetée est identique pour l'ensemble des scénarios. Par conséquent, et indépendamment de leur composition radiologique, les concentrations d'uranium dans la chaîne alimentaires sont identiques pour l'ensemble des cas.

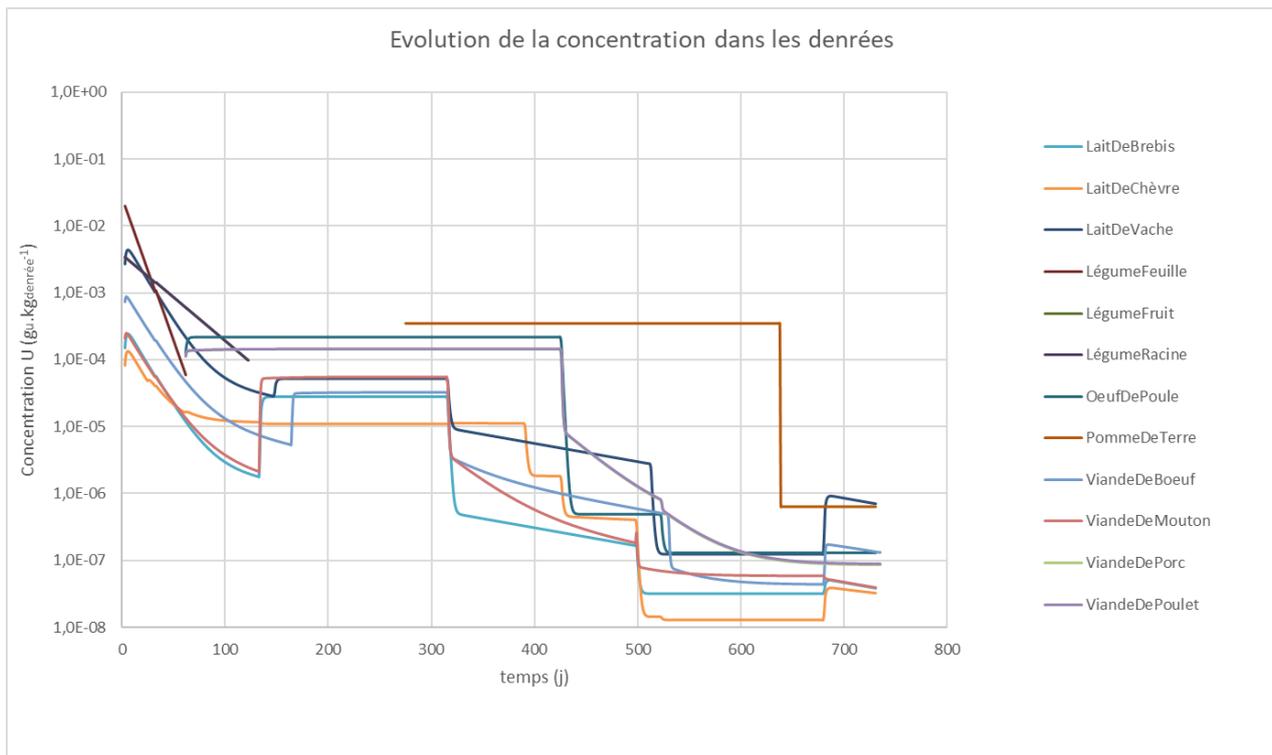


Figure A11 - 1 : Exemple de l'évolution de la concentration en uranium dans les denrées à 1000 m du point de rejet

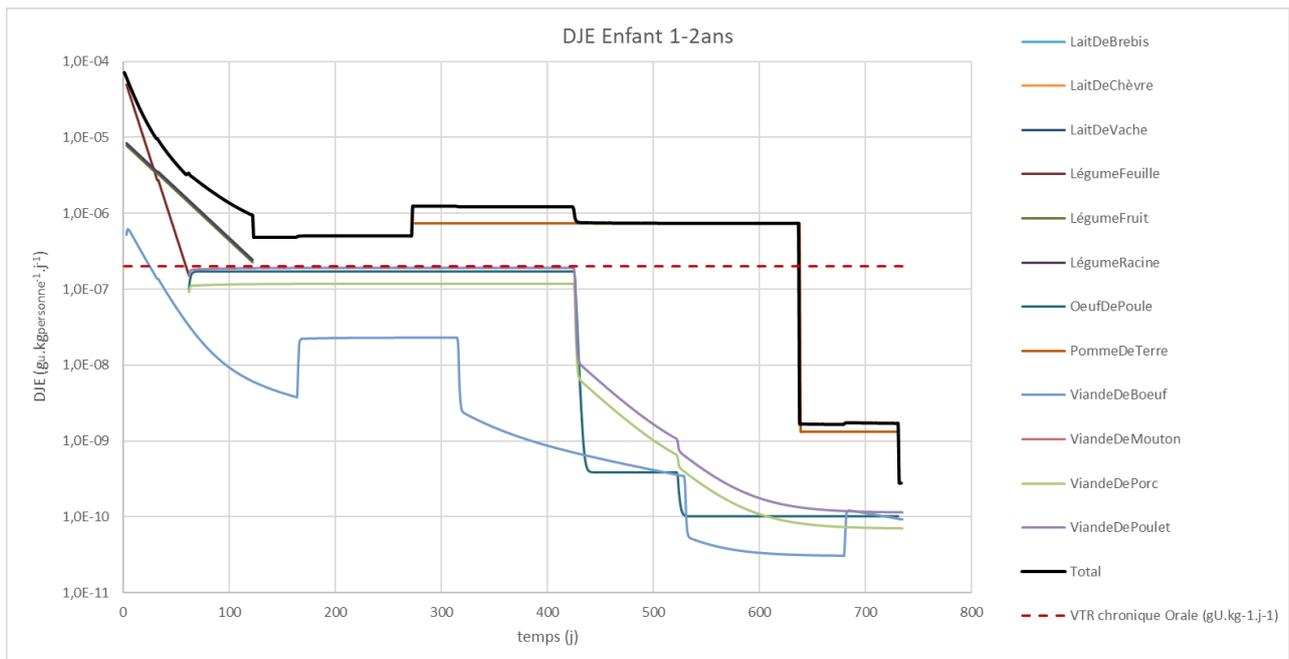


Figure A11 - 2 : Évolution de la dose journalière d'exposition (DJE) calculée sur 1 jour associée à l'ingestion de denrées à 1000 m du point de rejet pour l'enfant de 1 an à 2 ans

Le calcul des expositions est basé sur l'identification de périodes durant lesquelles les DJE peuvent être considérées comme constantes. Or, la DJE quotidienne totale varie de plus de deux ordres de grandeur durant la première année suivant les rejets (cf. Figure A11 - 1). De même, durant la deuxième année, deux phases distinctes sont observables, pour lesquelles les DJE totales sont différentes de deux ordres de grandeur.

Calculer des indices de risques annuels, sur le modèle du calcul de dose ingestion réalisé pour l'impact radiologique (doses reçues respectivement durant la 1^{ère} et la 2^{ème} année), apparaît inadapté pour l'impact chimique par voie d'ingestion d'uranium. L'évaluation pourrait devoir prendre en compte une approche spécifique tenant compte de l'évolution temporelle de la dose d'uranium ingérée.

Dans le cas considéré, l'analyse des résultats de la modélisation montre des phases temporelles durant lesquelles les concentrations dans les denrées consommées peuvent être considérées comme homogènes.

Pour l'exposition par ingestion de denrées, le calcul d'un indice de risque global semble peu représentatif. Néanmoins, compte tenu des niveaux de contaminations, les concentrations d'uranium dans les denrées conduiraient, sur la base d'un scénario d'exposition d'un individu qui consommerait durant quelques jours des denrées, à des QD très supérieurs à 1 (cf. Tableau A11 - 7). Les QD obtenus seraient de l'ordre de 400 pour un enfant qui consommerait ces denrées dans les jours suivant à l'accident, à environ 6 pour un individu qui les consommerait 4 mois environ après le rejet. Les QD calculés pour la phase stationnaire, de 4 mois à 18 mois environ après le rejet, seraient du même ordre de grandeur. **Les quotients de danger calculés lors des deux premières phases, entre 4 mois et 1 an et demi suivant le rejet, seraient très supérieurs à la valeur référence de 1. L'apparition d'un effet néfaste sur la santé pour une exposition chronique ne peut être exclue, et le niveau de risque serait jugé préoccupant.**

La troisième phase débute, dans le scénario considéré, 18 mois environ après l'accident, soit après la dernière récolte. Les indices de risques qui seraient calculés seraient inférieurs de plus de 2 ordres de grandeur à ceux calculés durant la phase stationnaire. L'IRSN estime donc que cette phase représente peu d'enjeux vis-à-vis des

deux premières. Les QD calculés seraient de l'ordre de ceux calculés pour l'exposition par inhalation des particules de sol remises en suspension.

Cette méthode est basée sur l'analyse des variations de concentrations dans les denrées. Ces variations dépendent de la forme physico chimique de l'uranium, du type de denrées potentiellement contaminées, de la date de l'accident, etc. Elle ne peut pas conséquent pas être appliquée de manière générique, et doit être déclinée à chaque cas d'étude considéré.

Cette approche est basée sur l'analyse des variations de concentrations dans les denrées. Ces variations dépendent de polluant, du type de denrées potentiellement contaminées, de la date de l'accident, etc. Elle ne peut pas conséquent pas être appliquée de manière générique, et doit être déclinée à chaque cas d'étude considéré.

Remarque

Cette problématique est spécifique à l'évaluation du risque chimique, qui se base sur une notion de dose journalière d'exposition (DJE) quotidienne. Elle ne se rencontre pas dans l'évaluation du risque radiologique : le calcul d'une dose par ingestion sur une période intègre la quantité totale de radionucléide ingérée sur cette période, et ne fait pas appel à des grandeurs quotidiennes.

Tableau A11 - 7 : Quotients de danger calculés pour l'exposition par ingestion de denrées pour l'enfant de 1 an à 2 ans

	QD subchronique ou chronique (-)
Phase transitoire	min : 6
	max : 390
phase stationnaire	5,6
phase postérieure	$1,5 \cdot 10^{-2}$

Les quotients de danger (QD) calculés pour l'ingestion involontaire de sol et pour l'inhalation par remise en suspension sont présentés dans le Tableau A11 - 8 pour l'exposition chronique, et dans le Tableau A11 - 9 pour l'exposition subchronique.

Tableau A11 - 8 : Quotients de Danger (QD) calculés pour une exposition chronique - tous scénarios

	Ingestion involontaire de sol et de poussière	Inhalation par remise en suspension
Enfant 1 an - 2 ans	5,1	0,05
Adulte	0,3	0,05

Tableau A11 - 9 : Quotients de Danger (QD) calculés pour une exposition subchronique - tous scénarios

	Ingestion involontaire de sol et de poussière	Inhalation par remise en suspension
Enfant 1 an - 2 ans	5,1	0,02
Adulte	0,3	0,02

L'évaluation réalisée montre que, si le rejet était de l'UF₆ (composé soluble), les niveaux d'exposition au cours des deux premières années de la phase post-accidentelle seraient supérieurs aux valeurs de référence pour des distances très supérieures à celles concernées par l'atteinte des valeurs seuils spécifiques à la phase d'urgence.

L'impact chimique de l'uranium étant indépendant de sa composition isotopique, les contributions respectives des voies d'expositions sont identiques pour l'ensemble des scénarios de rejet considérés. Concernant ces contributions, l'évaluation réalisée montre que :

- l'ingestion de denrées alimentaires contaminées est la voie d'exposition prépondérante durant les 18 mois suivant les rejets. Après une première phase transitoire durant laquelle les QD seraient supérieurs de plusieurs ordres de grandeur à la valeur repère de 1 (essentiellement suite à l'ingestion de légumes à feuilles directement exposés aux retombées du panache), les QD seraient, jusqu'à la fin des dernières récoltes des cultures impactées, durablement supérieurs à 1.
- l'ingestion de sol par inadvertance, sur la base d'une exposition chronique, est une voie d'exposition secondaire par rapport à l'ingestion de denrées, sur la base d'une exposition subchronique²⁴ ; elle conduit cependant à des QD supérieurs à ceux calculés pour l'inhalation par remise en suspension, d'un facteur 5 pour l'adulte, d'un facteur 100 pour l'enfant de 1 an à 2 ans ;
- les enfants sont plus sensibles à l'ingestion involontaire de sol que les adultes ;
- l'inhalation par remise en suspension est une voie d'exposition secondaire pour l'ensemble des classes d'âge et pour les deux années qui suivent les rejets.

11.5. Comparaison des activités dans les denrées aux NMA

L'évolution de l'activité massique dans les produits laitiers et dans les autres denrées alimentaires est présentée sur la Figure A11 - 3 et la Figure A11 - 4 respectivement. À l'exception des légumes feuilles durant les premiers jours suivant l'accident, la totalité des activités dans les denrées alimentaires ne dépassent pas les NMA.

²⁴ Pour rappel, pour l'ingestion, les deux VTR subchronique et chronique sont égales (0,2 µg.kg⁻¹.j⁻¹) cf Tableau A10 - 1

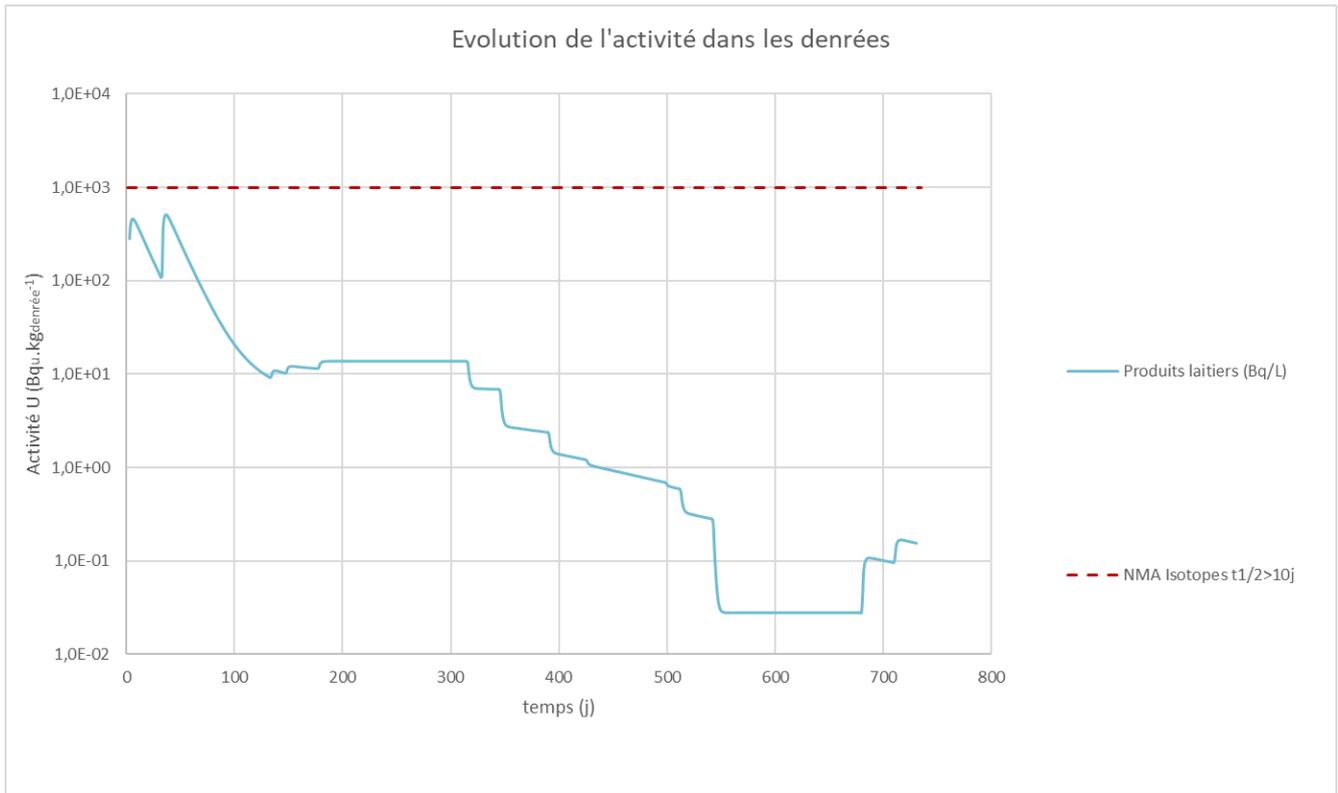


Figure A11 - 3 : Comparaison de l'activité dans les produits laitiers avec les NMA pour le cas uranium enrichi à 3,7 %

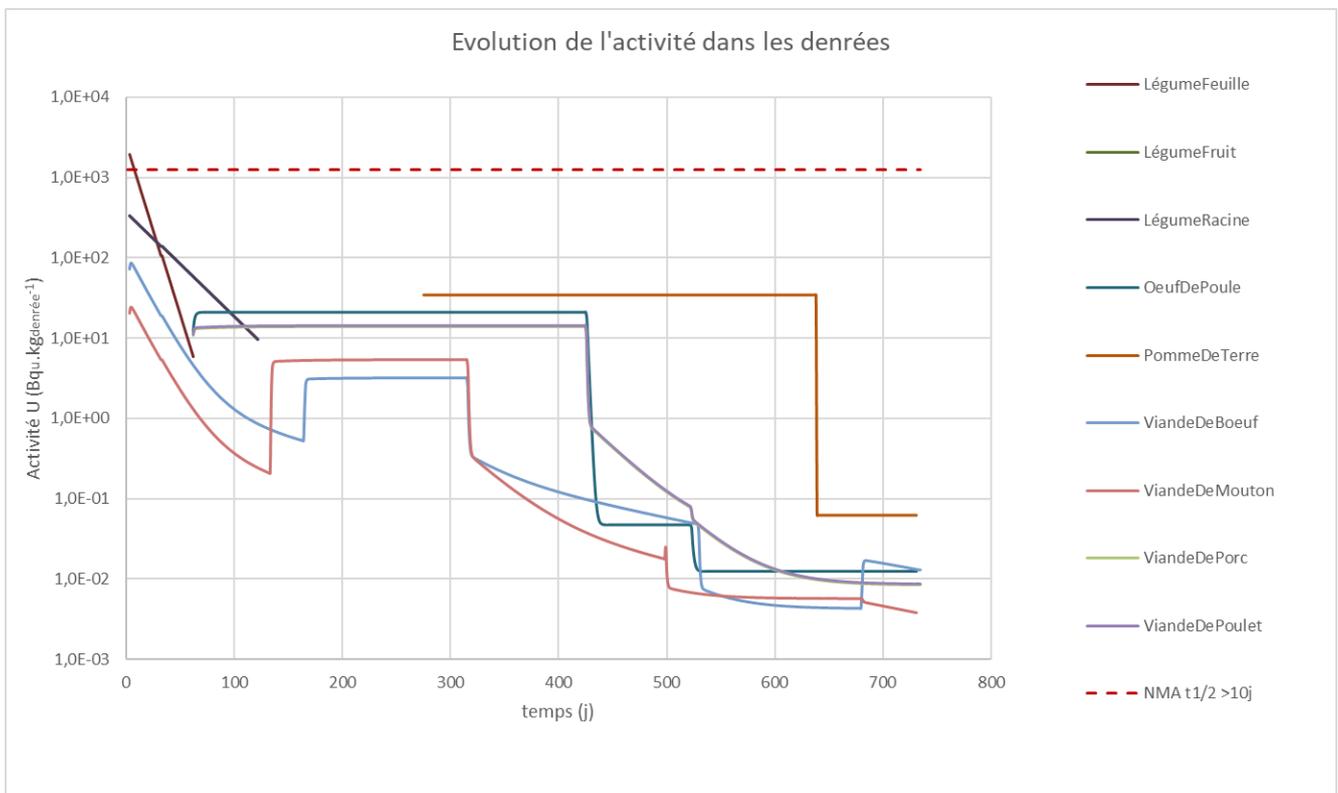


Figure A11 - 4 : Comparaison de l'activité dans les autres denrées avec les NMA pour le cas uranium enrichi à 3,7 %

11.6. Conclusion sur l'évaluation des impacts radiologique et chimique en phase post-accidentelle

Dans le cadre de l'étude réalisée considérant un rejet de 100 kg d'uranium, les doses efficaces maximales calculées à 1 km de la source sont, pour la phase post-accidentelles, de l'ordre de 4,5 mSv.an⁻¹ la première année, et de 1 mSv.an⁻¹ la deuxième année. Du point de vue chimique, cependant, les QD sont durablement supérieurs à 1 dès la fin des rejets.

S'il n'est pas à proprement parler possible de comparer résultats d'impact chimique et radiologique, la présente étude montre que les valeurs repères seraient atteintes à 1000 m pour l'impact chimique et non pour l'impact radiologique. Pour l'ensemble des cas de calcul, et selon les paramètres retenus pour cette étude, il apparaît donc que c'est l'aspect chimique qui serait amené à dimensionner le territoire sur lequel envisager des mesures de protection.

De même, la comparaison des activités calculées dans les denrées destinées à la consommation avec les valeurs de NMA montre que la totalité des activités dans les denrées alimentaires ne dépassent pas les NMA. Il apparaît donc que, dans le cas d'un rejet d'uranium peu enrichi (ex : UNE enrichi 3,7 %), les NMA ne sont pas adaptées.

Il convient néanmoins de rester prudent dans l'interprétation des résultats de ces évaluations, celles-ci étant dépendantes du choix de paramètres discutables pouvant contribuer à surestimer ou sous-estimer les voies d'expositions. À titre d'exemple, les QD calculés sur la base de VTR insolubles seraient inférieurs d'un facteur 20 à ceux calculés dans cette étude pour l'inhalation (Tableau A11 - 8). De même, pour l'aspect radiologique, une solubilité plus pénalisante que celle retenue (type M), pourrait être retenue pour certains composés d'uranium (ex : type S pour UO₂, U₃O₈), augmentant par conséquent les doses associées à l'inhalation.

11.7. Détail des voies d'exposition

11.7.1. Exposition externe

L'exposition externe n'est pas une problématique en cas de rejet d'uranium seul. L'évaluation dosimétrique de l'exposition externe va dépendre d'un budget temps (temps quotidien passé à l'extérieur ou à l'intérieur des habitations), de l'efficacité de protection des habitats, et enfin des coefficients de dose utilisés. Les analyses de sensibilités réalisées montrent que, quel que soit le budget temps retenu, la contribution de cette voie d'exposition à la dose efficace totale reste négligeable. Le vieillissement de l'uranium, et la présence de descendants radioactifs émetteurs beta gamme, a cependant une influence sur cette voie d'exposition.

11.7.2. Ingestion d'aliments contaminés

L'évaluation de la dose par ingestion d'aliments contaminés est, comme pour tous les types de rejets, dépendante du régime alimentaire des populations et de la part des aliments produits localement dans le panier consommé.

Les modèles utilisés montrent que la dose reçue par ingestion des denrées alimentaires diminue d'un facteur 6 environ entre la première et la deuxième année. Concernant l'aspect chimique, ces modèles montrent que l'ingestion de denrées est la voie d'exposition principale jusqu'à la fin de la consommation des dernières récoltes impactées.

À la fois pour l'aspect radiologique et pour l'aspect chimique, une limitation de la consommation des productions végétales exposées au panache réduirait sensiblement la quantité de polluant reçue par ingestion.

Nos modèles ne considèrent pas aujourd'hui le dépôt secondaire par remise en suspension sur les végétaux ni l'ingestion de sol par les animaux qui sont des voies de contamination potentiellement sensibles. Des études complémentaires pourraient être menées pour évaluer l'impact de ces contaminations secondaires.

11.7.3. Ingestion involontaire de sol et de poussière

L'ingestion involontaire de sol et de poussière couvre l'ingestion de particules déposées sur les surfaces puis portées par inadvertance à la bouche via la main et de celles attachées à des aliments végétaux non lavés. Cette voie d'exposition est particulièrement sensible pour les enfants jouant au sol et portant plus souvent leurs mains à la bouche que les adultes. Elle est étudiée pour les polluants chimiques, particulièrement le plomb du fait des problématiques de plombémie.

Au-delà des niveaux de contamination du sol, l'évaluation de cette voie d'exposition nécessite la connaissance de plusieurs paramètres tels que la quantité de poussières ingérée et la fréquence des contacts main-bouche. Différentes valeurs de ces paramètres sont disponibles dans la littérature mais dépendent fortement des modes de vie (en maison ou en immeuble), des habitudes de vie (tabagisme²⁵), des populations exposées et également des saisons. Les données d'aujourd'hui sont imparfaites et ne sont pas encore complètement recensées ni analysées, ce qui conduit à une incertitude significative.

L'évaluation de l'exposition par ingestion involontaire est directement proportionnelle au niveau d'activité du sol et de la poussière. Cette exposition est un rapport entre le dépôt, la densité du sol et la profondeur d'homogénéisation du dépôt. Même si l'uranium migre peu profondément dans le sol en conditions naturelles, ce dernier paramètre est difficilement quantifiable a priori car il dépendra de la manipulation éventuelle du sol. Par défaut une valeur très faible de hauteur d'homogénéisation peut être proposée ; cependant une erreur d'appréciation pourrait entraîner un biais proportionnel sur l'estimation de cette activité et donc directement sur l'estimation de la dose qui en découle.

11.7.4. Remise en suspension

La dose ou QD associés à l'exposition par cette voie d'exposition est proportionnelle à la quantité de polluants inhalée par les personnes exposées.

Les débits respiratoires des populations utilisés dans nos outils sont issus de la publication 66 de la CIPR [A11-5], les budgets temps sont ceux habituellement utilisés dans les outils du centre de crise de l'IRSN. Cependant, modifier le budget temps en supposant la population cible en extérieur pendant 1 an ne conduirait à augmenter la dose que de 40 % pour l'adulte.

Pour les évaluations dosimétriques, le choix du facteur de remise en suspension est plus délicat. La disponibilité des particules déposées diminue au cours du temps. Or le facteur utilisé habituellement dans nos outils de crise « 10^{-7} » ne semble pas protéger les premiers mois de l'exposition. Le Tableau A11 - 10 présente l'évaluation de la dose en prenant en compte une évolution du facteur de remise en suspension au cours de la première année. Le Tableau A11 - 11 présente l'évaluation du QD prenant en compte cette même exposition, pour un type d'exposition subchronique²⁶.

Comme attendu, une sous-estimation de la dose reçue par inhalation des particules remises en suspension est observée entre l'utilisation d'un facteur constant et d'un facteur évolutif la première année, de plus d'un facteur 10 dans l'exemple étudié. Quelques années après la formation des dépôts le facteur de remise en suspension est de l'ordre de 10^{-9} , aussi l'évaluation de la dose reçue au bout de quelques années est surestimée.

²⁵ Un fumeur porte un grand nombre de fois sa main à la bouche.

²⁶ L'exposition subchronique est définie pour l'homme comme une exposition d'une durée généralement comprise entre 15 jours et un an. La durée minimale généralement considérée pour une exposition chronique est d'un an.

Concernant l'aspect chimique, compte tenu de l'évolution des facteurs de remise en suspension et de la différence de VTR retenues, les QD calculés durant les deux premières périodes sont supérieurs à ceux calculés en tenant compte d'un facteur de remise en suspension constant.

Tableau A11 - 10 : Évaluation de la dose inhalation par remise en suspension pour un adulte et un coefficient de remise en suspension évolutif (μSv)

		Dose sur la période (μSv)				
	Période	Enrichi 3,7 %	Appauvri 0,2 %	Enrichi 3,7 % vieilli	Enrichi 50 %	Naturel
Intérieur / Extérieur	10^{-5} [1-30 j]	119,0	16,1	118,7	1734,2	30,4
	10^{-6} [31-183 j]	60,3	8,1	60,1	878,6	15,4
	10^{-7} [184-365 j]	7,2	1,0	7,2	104,6	1,8
	Dose totale ($\text{mSv}\cdot\text{an}^{-1}$)	186,4	25,2	186,0	2717,4	47,7

Tableau A11 - 11 : Évaluation du QD inhalation par remise en suspension pour un adulte et un coefficient de remise en suspension évolutif (-)

	Période	QD subchronique
Intérieur / Extérieur	10^{-5} [1-30 j]	1,8
	10^{-6} [31-183 j]	0,2
	10^{-7} [184-365 j]	0,02

11.8. Références

- [A11-1] UNEP, Depleted Uranium in Kosovo - A Post-Conflict Assessment ISBN No: 92-807- 2146-1 – UNEP.
- [A11-2] D. Delacroix, J.P. Guerre, P. Leblanc, 2022. Guide pratique radionucléides & radioprotection - 3ème édition. EDP Sciences EAN13 : 9782759826377
- [A11-3] Ansoborlo, E., Henge Napoli, M.H., Roy, M., Pihet, P. and Rannou, A., 1995. Implementation of the new ICRP respiratory tract model: Example of a potential exposure to an industrial oxide UO₂. Bul. of Radiat. Protection 18(1 & 2): 1-7.
- [A11-4] <http://www.wise-uranium.org/rccu.html>
- [A11-5] ICRP, 1994. Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. ICRP Publication 66. Ann. ICRP 24.
- [A11-6] Moya, J., Phillips, L. 2014. A review of soil and dust ingestion studies for children. Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology 24(6), 545-554.
- [A11-7] Bertrand M., 1993. Consommation et lieux d'achats des produits alimentaires en 1991, collection INSEE Résultats, Consommation-Modes de vie 54-55.
- [A11-8] Boggio V, Grossiord A., Guyon S., Fuchs F. et Fantino M., 1993. Consommation alimentaire des nourrissons et des enfants en bas âge de France en 1997, Archives de pédiatrie à vol 6.

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

31 av. de la division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
RCS Nanterre B 440 546 018

COURRIER

B.P 17 - 92262 Fontenay-aux-Roses

TÉLÉPHONE

+33 (0)1 58 35 88 88

SITE INTERNET

www.irsn.fr

MEMBRE DE
ETSON