

**RADIOACTIVITÉ D'ORIGINES NATURELLE ET ARTIFICIELLE**  
**DANS QUELQUES ESPÈCES MARINES EN MANCHE**  
**CAS DES ÉMETTEURS ALPHA POLONIUM ET PLUTONIUM.**  
**SYNTHÈSE DE DONNÉES ACQUISES DANS LE NORD COTENTIN DEPUIS 1990.**  
**ÉLÉMENTS DE COMPARAISON**

**O. Connan, P. Germain, G. Gouret, L. Solier**

**IRSN-DEI-SECRE, Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville, BP10, rue  
Max Pol Fouchet, 50130 Cherbourg Octeville**

## **Introduction**

Définir des radionucléides clés et des organismes de référence pour étudier les effets des rayonnements sur l'environnement et le protéger est devenu depuis quelques années une priorité qui s'est traduite par l'émergence de programmes européens tel FASSET (Framework for ASSESSment of Environmental impact). Dans ce sens, bien connaître les variations spatio-temporelles des radioéléments chez les espèces en un lieu donné et sur une longue période apparaît comme une étape importante.

Le polonium 210 présent dans l'environnement est d'origine naturelle et est produit par la décroissance du  $^{210}\text{Pb}$ , lui-même descendant du  $^{226}\text{Ra}$ . Le  $^{210}\text{Po}$  a été étudié dans le milieu marin parce qu'il représente la source majeure d'irradiation interne d'origine naturelle des organismes marins ; il est aussi responsable pour une part importante des doses reçues par l'homme du fait de la consommation de produits de la mer. Il est connu que le  $^{210}\text{Po}$  est transféré le long des chaînes marines trophiques, avec l'ingestion comme mode principal d'entrée dans les organismes. Le plutonium en milieu marin est lui d'origine artificielle. Trois sources principales ont disséminé du plutonium dans l'environnement : les essais d'armes nucléaires, les rejets d'installations nucléaires et les accidents. Le plutonium en milieu marin provient actuellement principalement des rejets des usines de retraitement de combustibles usés, bien que la forte baisse des quantités rejetées dans le milieu naturel induise des concentrations en forte diminution. S'appuyant sur les activités relevées pour les radionucléides  $^{210}\text{Po}$  et  $^{238,239-240}\text{Pu}$  chez diverses espèces marines (algues, mollusques, crustacés, poissons) récoltées sur les côtes de la Manche depuis les années 1990, ainsi que sur leurs variations spatio-temporelles, nous montrerons l'intérêt du choix comme espèces indicatrices des mollusques notamment. De plus, Il est intéressant de mettre en parallèle ces deux radioéléments naturel et artificiel, émetteurs alpha d'énergie similaire, et dont on peut supposer que l'impact en terme de dose sur les organismes, à activité égale, est proche.

## **Jeu de données**

Les données discutées proviennent d'études essentiellement réalisées par le Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville de 1990 à 2004<sup>(1,5,6,7)</sup> et de données issues de la littérature<sup>(2,4,8)</sup>.

## **Résultats : Activités en Polonium et Plutonium dans l'eau de mer et chez diverses espèces marines**

**L'eau de mer** : elle est le principal vecteur apportant les radionucléides aux espèces. Les mesures de concentration de plutonium en Manche sont homogènes sur les 10 dernières

années avec des valeurs de  $^{239,240}\text{Pu}$  dans les eaux côtières du Nord-Cotentin de  $10 \pm 2 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$  en 1992, de  $11 \pm 1 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$  en 1996<sup>(7)</sup>. En 2001, un suivi mensuel à la pointe Nord Ouest de la Presqu'île du Cotentin montre des valeurs variant de 2 à  $12 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$  pour le  $^{239,240}\text{Pu}$  et de 0,4 à  $7,4 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$  pour le  $^{238}\text{Pu}$ . Les concentrations en  $^{210}\text{Po}$  dans l'eau de mer sont plus élevées ; en 1991, l'activité moyenne en  $^{210}\text{Po}$  était de  $470 \pm 210 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$  à Barfleur (Est du Cotentin)<sup>(5)</sup>; en 2004, l'activité est de  $350 \pm 110 \cdot 10^{-6} \text{ Bq.L}^{-1}$ .

**Les Algues** : les données en Pu et Po ont été obtenues sur des algues brunes *Fucus Sp.* Les mesures de  $^{239,240}\text{Pu}$  variaient de 0,02 à  $0,27 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  sur plusieurs sites du Nord Cotentin entre 1990 et 1993, et entre 0,02 et  $0,08 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  sur ces mêmes sites en 1996<sup>(7)</sup>. Les mesures faites par Cogema La Hague<sup>(4)</sup> en 2003 indiquent des valeurs < à  $0,1 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239,240}\text{Pu}$  à Barfleur. Les données moyennes en  $^{210}\text{Po}$  obtenues sur des sites situés à l'Est et à l'Ouest du Cotentin en 1990-1991 étaient respectivement de  $1,04 \pm 0,23 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  et  $3,00 \pm 0,80 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$ <sup>(5)</sup>; en 2004, ces concentrations sont respectivement de  $1,35 \pm 0,31 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  et de  $2,01 \pm 0,62 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$ .

**Les Mollusques** : de 1990 à 1996, des teneurs variant de 0,007 à  $0,063 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en  $^{239,240}\text{Pu}$  ont été observées sur des patelles<sup>(7)</sup>. Pour les moules, les teneurs en  $^{239,240}\text{Pu}$  étaient de 0,010 à  $0,024 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 1991 à Wimereux, à l'Est de la Manche<sup>(7)</sup>. En 2003, des mesures de Cogema La Hague<sup>(4)</sup> indiquent des teneurs < à  $0,017 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en  $^{238}\text{Pu}$  et < à  $0,028 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en  $^{239,240}\text{Pu}$  pour la zone Est Cotentin, et < à  $0,018 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  pour la zone Ouest Cotentin pour  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239,240}\text{Pu}$ . Pour le  $^{210}\text{Po}$ , à Barfleur, les teneurs moyennes pour les chairs de moules étaient de  $28,3 \pm 10,7 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 1990 et sont de  $22,2 \pm 6,3 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 2004. Dans la zone Ouest Cotentin, où les teneurs sont habituellement plus élevées, elles varient de  $50,3 \pm 10,7 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 1990 à  $31,9 \pm 6,6 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 2004. Chez les patelles, dans le golfe normand-breton, les teneurs en  $^{210}\text{Po}$  étaient de l'ordre de  $14 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 1991, de  $10 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en 2004. Des mesures ont été effectuées chez les huîtres en 2004 sur plusieurs sites de la Manche avec des activités variant de 15 à  $60 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$ .

**Les poissons** : les activités en  $^{210}\text{Po}$  dans les chairs de soles et de plie variaient de 0,4 à  $3,8 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  en Manche en 1993<sup>(6)</sup>. Peu de données existent concernant les activités en plutonium chez les poissons en Manche. Pour la zone Cotentin (Est et Ouest), Cogema La Hague a mesuré en 2003 des activités < à  $0,014 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$  pour les chairs de poissons ronds et plats<sup>(4)</sup>.

## Discussion

### Activités, facteur de concentration et doses aux espèces

Les études menées sur le polonium sur divers sites de la Manche, en 1990-1993 puis en 2003-2004 par notre laboratoire, montrent que les teneurs dans les diverses espèces ont peu évolué durant cette période. Nous montrons également, pour les deux régions les plus échantillonnées (Ouest et Est du Cotentin) que les variations spatiales et saisonnières des activités de  $^{210}\text{Po}$  sont similaires sur les deux périodes. Cette homogénéité des résultats dans le temps est intéressante pour affiner les calculs de facteurs de concentration et de doses aux espèces, en se basant sur un jeu de données conséquent. Les facteurs moyens de concentration pour le  $^{210}\text{Po}$  sont respectivement de  $4 \times 10^3$ ,  $25 \times 10^3$ ,  $64 \times 10^3$  et  $66 \times 10^3$  pour les algues, patelles, huîtres et moules (animaux entiers), sur la base des mesures que nous avons effectuées en 2004 sur le site de Barfleur. La dose d'irradiation interne reçue par les diverses espèces marines a été calculée en se basant sur ces mesures et sur le modèle de calcul de Carvalho<sup>(3)</sup>; la dose moyenne est de 40 et  $600 \mu\text{G.an}^{-1}$  pour les algues et les huîtres respectivement (en estimant une activité moyenne uniforme pour la chair des mollusques). Pour le plutonium, les études menées depuis le début des années 1990 indiquent que les quantités chez les espèces marines de la Manche sont faibles (généralement < à  $0,2 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{frais}}$ ) avec des variations spatiales très peu marquées<sup>(7)</sup>. Les

facteurs de concentration pour le plutonium sont de  $4 \times 10^3$  et  $3 \times 10^3$  pour les algues et les patelles<sup>(7)</sup>.

### Répartition par organes

La connaissance de la distribution d'un élément au niveau des organes puis au niveau cellulaire doit apporter des informations sur ses voies de transferts internes, sa mobilité, sa biodisponibilité. Les études sur la répartition par organes des activités de  $^{210}\text{Po}$  ont montré une concentration préférentielle dans les glandes digestives et les branchies pour les poissons et les moules<sup>(1,6)</sup>. Nos travaux récents sur les huîtres confirment cette localisation du polonium (environ 60 et 25% du  $^{210}\text{Po}$  total des chairs respectivement dans la glande digestive et les branchies). Au niveau subcellulaire, peu de données sont disponibles et elles présentent une grande diversité. De 20 à 60% du  $^{210}\text{Po}$  fixé par les glandes digestives se retrouvent dans la fraction cytosolique selon les espèces<sup>(1)</sup>; il a été montré que le  $^{210}\text{Po}$  du cytosol était principalement lié à des protéines comme la ferritine ou des métallothionéines<sup>(2)</sup>. Pour le plutonium, une étude menée sur le homard montre aussi que l'hépatopancréas est le site principal d'incorporation après un marquage expérimental, le cytosol étant le compartiment subcellulaire où le pourcentage le plus important de plutonium est retrouvé avec également un lien avec la ferritine<sup>(8)</sup>.

### Conclusion

Cette synthèse présente les activités de polonium et de plutonium mesurées en Manche depuis 1990 chez diverses espèces marines. La différence de teneurs chez les organismes met en évidence la part importante du polonium comparé au plutonium. Dans une perspective de risques aux espèces, et d'une manière plus générale pour la protection de l'environnement contre les effets des radiations, des études sur les effets des doses induites par l'exposition chronique, à faible niveau, par les radioéléments artificiels et les radioéléments naturels devront être menées. Pour cela, il faut parfaitement connaître les niveaux d'activités, les variations spatio-temporelles, les facteurs de concentration et l'organotropisme chez certaines espèces ciblées. Dans cette optique, l'utilisation du polonium et du plutonium, avec comme bioindicateurs des mollusques moules et huîtres de la Manche semble adaptée; nous disposons en effet pour ces « couples » radionucléides/espèces d'un jeu de données « in-situ » sur une longue période.

### Références

- 1 : Bustamante P, Germain P, Lederc G et Miramand P (2002). Concentration and distribution of  $^{210}\text{Po}$  in the tissues of the scallop *Chlamys varia* and the mussel *Mytilus edulis* from the coasts of Charente-Maîttime (France). *Mar Pollut Bull*, 44: 997-1002.
- 2 : Durand JP, Carvalho FP, Goudard F, Pieri J, Fowler SW et Cotret O (1999).  $^{210}\text{Po}$  binding to metallothioneins and ferritin in the liver of teleost marine fish. *Mar Ecol - Prog Ser*, 177: 189-196.
- 3 : Carvalho FP (1988).  $^{210}\text{Po}$  in marine organisms: a wide range of natural radiation dose domains. *Radiat Prot Dosim*, 24,1-4:113-117
- 4 : Cogema La Hague (2003). Rapport Environnement annuel.
- 5 : Germain P, Lederc G, et Simon S (1995-a). Transfer of polonium-210 into *Mytilus Edulis* (L.) and *Fucus vesiculosus* (L.) from the baie de Seine (Channel coast of France). *Sci Total Environ*, 164: 109-123.
- 6 : Germain P, Boust D et Lederc G (1995-b). Progress report on studies undertaken for contract n° CEC F 13-P-CT 92 00 35 (years 1993-1995).
- 7 : Germain P, Lederc G, Le Cavalier S, Solier L et Baron Y (2000). Evolution spatio-temporelle des concentrations, des rapports isotopiques et des facteurs de concentration du plutonium dans une espèce d'algue et deux espèces de mollusques en Manche. *Radioprotection* 35 (2): 175-200.

8 : Toquet N (1994). Biodinétiques d'un élément transurannique, le  $^{238}\text{Pu}$  et d'une terre rare, le  $^{152}\text{Eu}$  chez le homard *Homarus gammarus* (organes et niveau cellulaire), modalités des transferts (accumulation et détoxification). Rapport CEA-R- 5698. Thèse de doctorat, Université de Nantes, 329p