

# ECOTOXICOLOGIE DE L'URANIUM DANS UN CONTEXTE DE CONTAMINATION MULTIPLE DES MILIEUX AQUATIQUES

Rodolphe GILBIN

Laureline FEVRIER, Olivier SIMON, Karine BEAUGELIN-SEILLER, Olivier ARMANT

[rodolphe.gilbin@irsn.fr](mailto:rodolphe.gilbin@irsn.fr)

*IRSN/ PSE-ENV/SRTE*

*Cadarache BP-3, Bat-159*

*F-13115 Saint-Paul-Lez-Durance*

## Présence d'uranium dans l'environnement

### [ L'U EST PRÉSENT DANS LES PRINCIPALES COMPOSANTES DES ÉCOSYSTÈMES

- | origine naturelle dans les formations géologiques sous-jacentes
- | remobilisation par les activités humaines dans les eaux de surface et les sédiments
  - exploitation du minerai d'U
  - cycle du combustible
  - autres activités industrielles (ex. industrie des engrais phosphatés et leur utilisation)

<https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/>



Fiche radionucléide  
**Uranium naturel et environnement**

## Effets adverses de l'U sur les organismes vivants

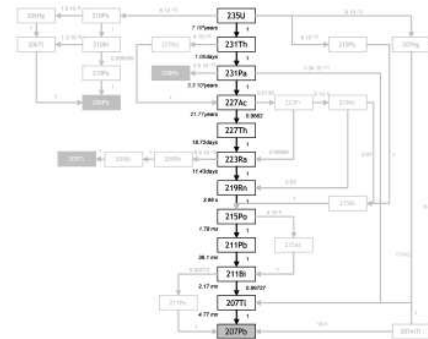
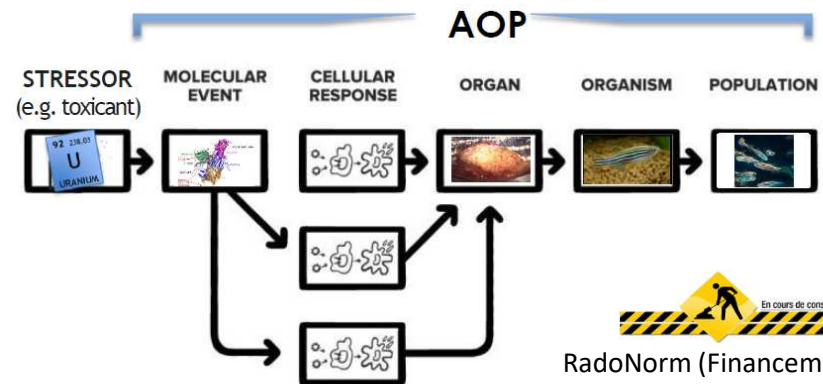
### [ INITIÉS PAR DIFFÉRENTS ÉVÈNEMENTS MOLÉCULAIRES

Principalement liés aux **propriétés chimiques de l'U**

- Formation d'espèces réactives de l'oxygène (dommages mitochondriaux, stress oxydatif)
- Propriétés mimétiques moléculaires (affinité pour les sites riches en phosphates, carbonyles : protéines, ADN, ATP...)

**Toxicité radiologique**

- pour des formes d'U enrichi en isotope 235 (Mathews et al. 2009)
- du fait de la contribution des descendants dans la chaîne de l'U235 et U238 à la dose radiologique (Beaugelin et al., 2016)



## Utilisation des connaissances en écotoxicologie pour l'évaluation du risque écologique

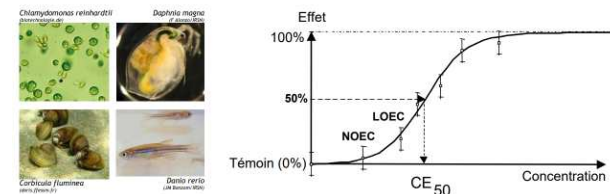
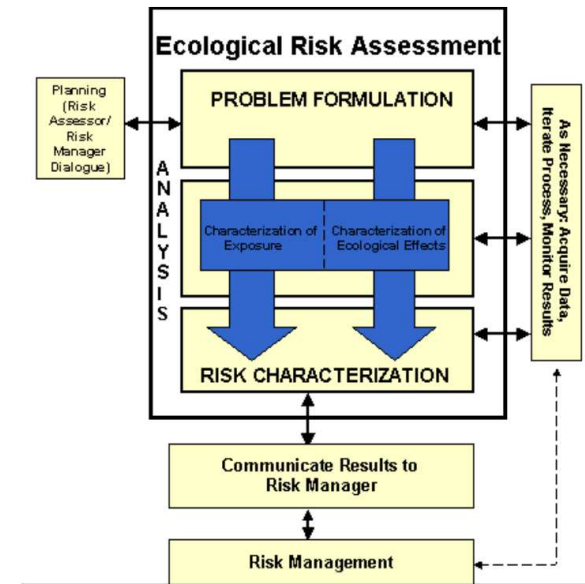
### [ MÉTHODES DÉRIVÉES DE L'APPROCHE DE L'US EPA (1998)

■ **Normes de Qualité Environnementale (NQE)** définies dans le contexte réglementaire de la Directive Cadre sur l'Eau (DCE 2000/60/EC)

#### ■ 5 cibles de protection

- communautés pélagiques (eaux douces)
- communautés benthiques (sédiments)
- prédateurs (biote - empoisonnement secondaire)
- santé humaine (eau de boisson – réglementation existante)
- santé humaine (ingestion des produits issus de la pêche)

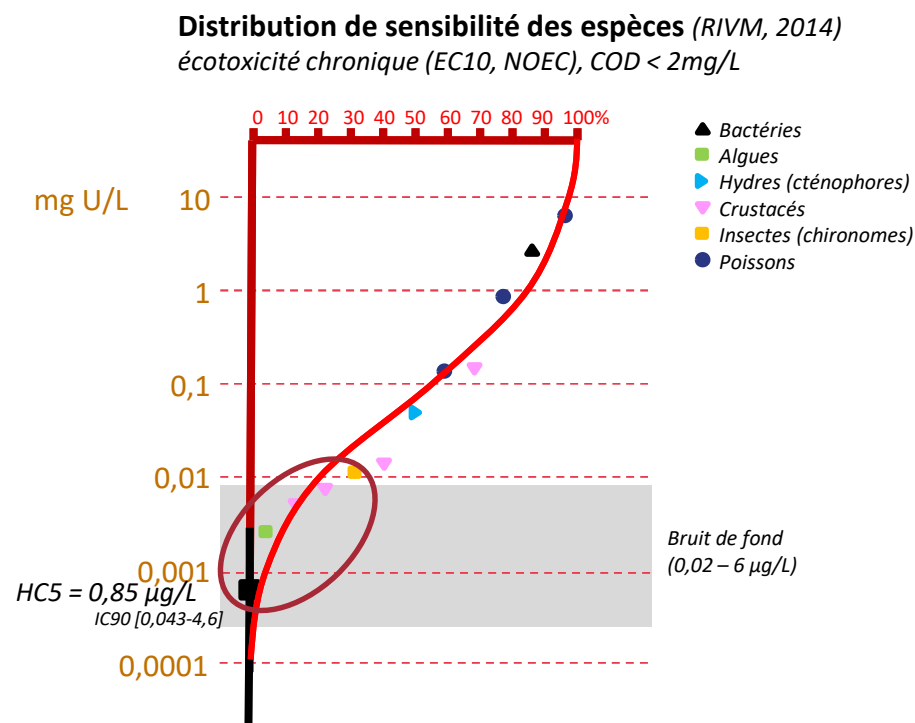
■ une **NQE globale** retient la plus faible des normes de qualité « spécifiques » déterminée pour chaque compartiment (Ineris, 2011)



## Ecotoxicité chronique de l'U pour les espèces d'eau douce

### [ CONNAISSANCES ESSENTIELLEMENT SUR TROIS TAXONS (ALGUES, CRUSTACÉS ET POISSONS)

- Environ **50 données d'écotoxicité chronique** (RIVM, 2014)  
Quelques rares données sur amphibiens, mollusques et cnidaires
- **Sensibilité des organismes vivants très variable** à l'U, de l'ordre du  $\mu\text{g/L}$  à plusieurs dizaines de  $\text{mg/L}$  selon les organismes aquatiques considérés
- Fortes variabilités **même pour une même espèce** (ex. poissons f(dureté), présence de COD) = changement de **biodisponibilité**
- Permet de sélectionner des **valeurs critiques conservatives** (NOECs, HC5)



## Ecotoxicité de l'U pour les autres cibles (communautés benthiques, prédateurs)

### [ CONNAISSANCES TRÈS RÉDUITES

#### ■ Communautés benthiques (sédiments)

- **rareté des données** disponibles (pas de données chronique)
- Bioessais normalisés réalisés pour 3 espèces benthiques (Simon et al., 2022)
- Plus faible NOEC (taux de survie *H. azteca*)  $40 \text{ mgU kg}^{-1}$
- **équivalent de  $0,4 \text{ } \mu\text{g/L}$  dans l'eau** (très proche de la PNEC<sub>eau</sub> générique)

#### ■ Empoisonnement secondaire des prédateurs

- rareté des études (7 sur la période 1949-2013)
- nombre de taxons testés faible (3 mammifères –souris, rat, chien- choix imposé par la destination sanitaire première des données), seule la moitié concerne la toxicité chronique
- Faible puissance statistique des résultats
- **besoin d'études de toxicité chronique animale** en conditions contrôlées moins incertaines

## Forte variabilité des NQE déterminées en Europe

### [ DIFFÉRENTS CHOIX MÉTHODOLOGIQUES ET INCERTITUDES DE CONNAISSANCE SUR L'ÉCOTOXICITÉ DE L'U POUR CERTAINS COMPARTIMENTS

Pays	Compartiment cible	Donnée d'(éco)toxicité critique retenue	Fact. sécurité	NQE U (µg/L)
Danmark (2011)	Santé humaine (ingestion)	<b>0.05 mg U/kg/j</b> (LOAEL lapin - Gilman et al., 1998)	10 x 3 x 3	<b>0,015</b>
Suède (2014)	eaux douces	<b>0,7 µg/L</b> (EC10 <i>Chlorella</i> – Charles et al., 2002)	10	<b>0,07</b>
Pays Bas (2014)	eaux douces	<b>0,85 µg/L</b> (HC5, SSD)	5	<b>0,17</b>
France (VGE Ineris, 2010)	eaux douces	<b>3,2 µg/L</b> (NOEC <i>Ceriodaphnia</i> – Pickett et al., 1993)	10	<b>0,3</b>
Belgique (2010)	eaux douces	<b>10 µg/L</b> (NOEC <i>Moinodaphnia</i> – Hyne et al., 1993)	10	<b>1</b>

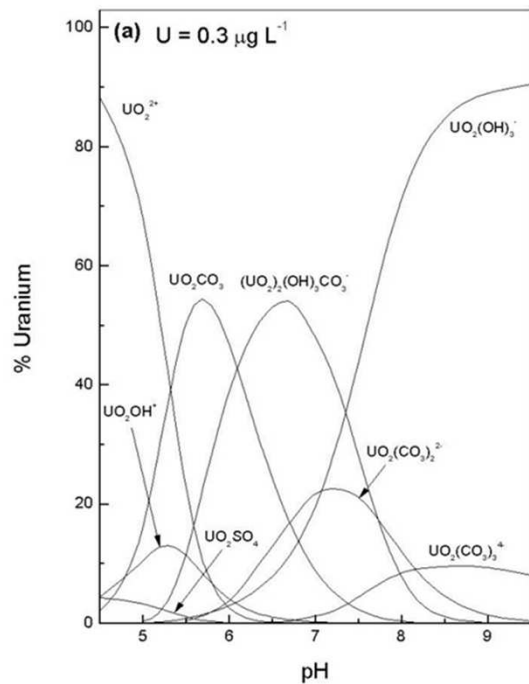
+ 2 valeurs non sourcées : Bulgarie (5 µg/L) et Rép. Tchèque (24 µg/L)



Vorkamp et Sanderson (2016)  
<http://dce2.au.dk/pub/SR198.pdf>

## Prise en compte de la biodisponibilité

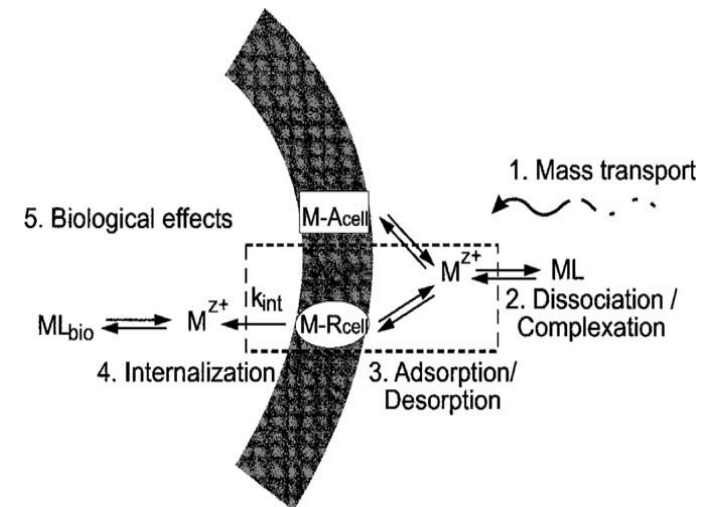
[ RECOMMANDÉ POUR LES MÉTAUX DANS LE CADRE DE LA DCE (CF. INERIS, 2012)



■ **Spéciation chimique complexe** de l'U : rôle du pH et de nombreux ligands (en rivière > 90 % de l'U associé à des complexes dissous (inorganiques ou organiques) et à la fraction colloïdale (colloïdes de fer, matière organique naturelle))

■ **Ecotoxicité de l'U variable selon les conditions physico-chimiques** des eaux (pH, cations compétiteurs (Ca, Mg), complexation par la matière organique naturelle)

■ **Espèce chimique 'libre' classiquement considérée comme indicatrice de la biodisponibilité** pour les organismes aquatiques (modèle de l'activité de l'ion libre) : ion uranyle **UO<sub>2</sub>[2+]**



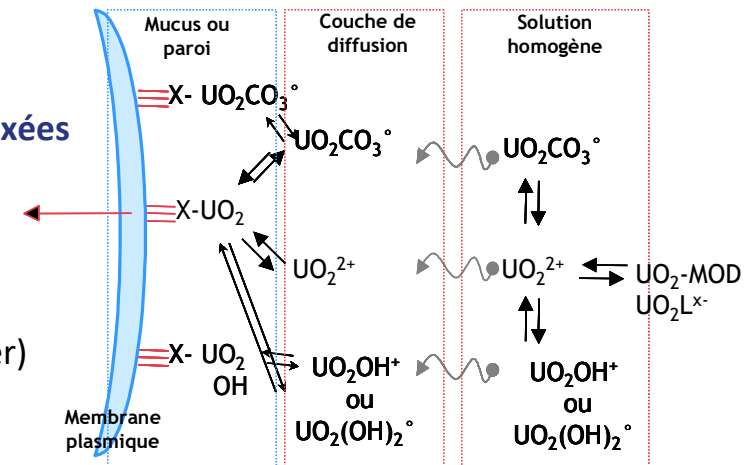
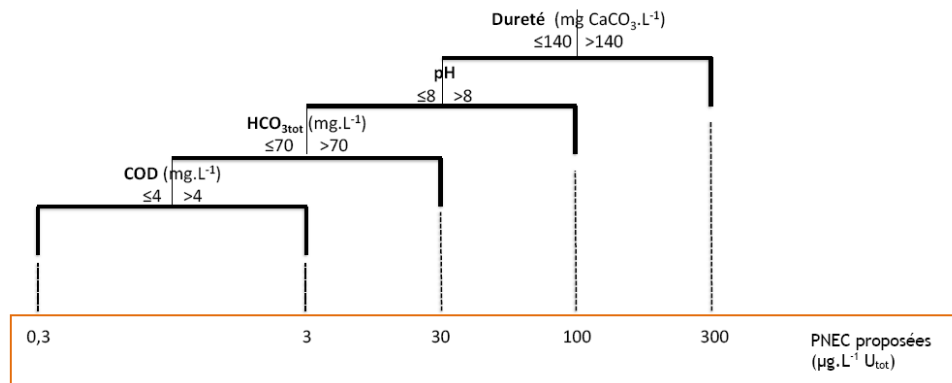
Hassler et al. (2009) DOI: (10.1897/03-149)



## Biodisponibilité et spéciation chimique de l'U

### DES LIENS COMPLEXES

- Les données publiées remettant en question le postulat du modèle d'activité des ions libres  
= **fortes présomption de biodisponibilité de formes complexées** (hydroxylées, carbonatées)
- La considération des espèces biodisponibles a permis de déterminer des **domaines physico-chimiques délimitant des classes de PNEC conditionnelles** (à consolider)



IRSN (2014)  
domaine d'application (BDD FOREGS)

- $6,4 \leq \text{pH} \leq 8,8$
- $8,8 \leq \text{HCO}_3^{\text{tot}} \leq 420,6 \text{ mg.L}^{-1}$
- $11,4 \leq \text{Dureté} \leq 1090,6 \text{ mg CaCO}_3.\text{L}^{-1}$
- $0,3 \leq \text{COD} \leq 23,4 \text{ mg C.L}^{-1}$

## Approche TRIADE en écotoxicologie

### [ INTÉRÊTS ET LIMITES DE L'APPROCHE « SUBSTANCE »

#### ■ approche « substance »

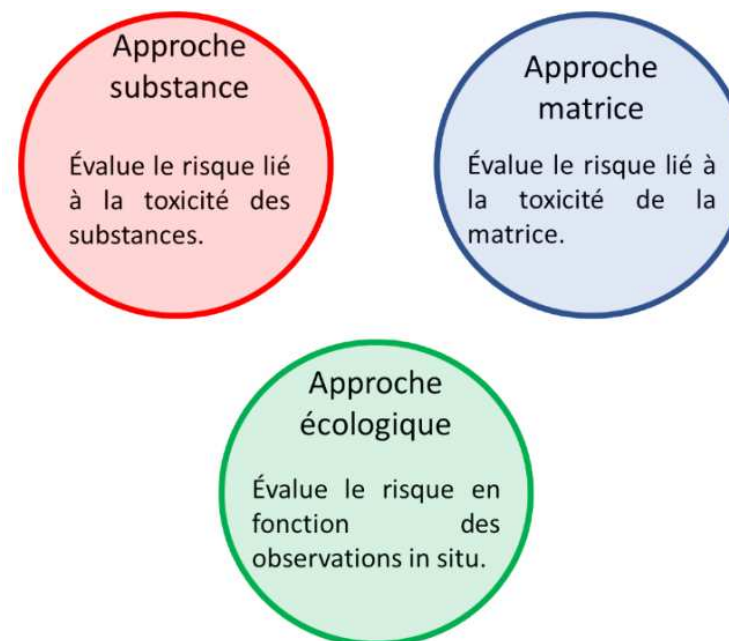
- cadre méthodologique clair (ex. DCE, TGD)
- utilisation des informations disponibles
- utile pour caractériser des impacts a priori et existants (calcul d'un ratio de risque, incrément du bruit de fond)
- **pas d'indication sur l'état de santé des écosystèmes** dans des conditions réalistes

#### ■ apport des deux autres « piliers » de l'évaluation du risque écologique

- **approche « matrice »** : tests d'écotoxicité sur des matrices environnementales
- **approche « écologique »** : caractérisation de l'état de l'écosystème sur le terrain

### 3 approches possibles

(Ineris, 2022)

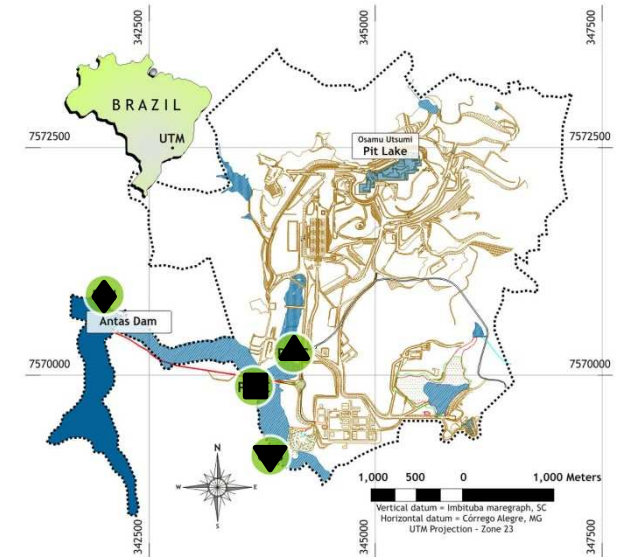
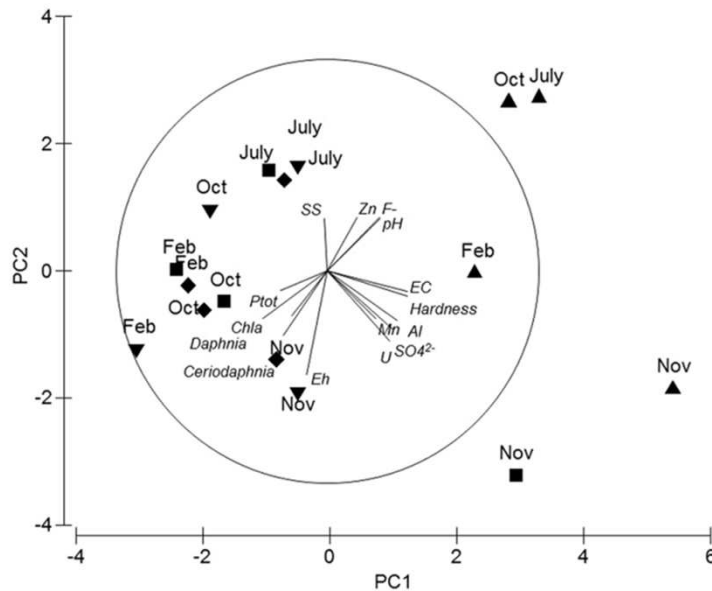


## Approche « matrice »

### [ BASSIN DE L'ANTAS (UTM, MINAS GERAIS, BRÉSIL)

■ **Analyses chimiques et tests écotoxicologiques** (bioessais aigus, *Ceriodaphnia silvestrii* et *Daphnia magna*)

■ **Dépassement des valeurs limites** (approche chimique) pour l'U et d'autres contaminants (F, SO<sub>4</sub>, Mn, Al)



Ferrari et al (2017), Sci Reports DOI:10.1038/s41598-017-14100-w

### ■ **Corrélation entre l'écotoxicité et l'uranium,** mais aussi les **métaux (Mn, Al, F), conductivité, pH**

- ➔ utilité pour évaluer les zones critiques au sein des écosystèmes aquatiques potentiellement impactés
- ➔ La dureté de l'eau réduit potentiellement la **biodisponibilité** de l'U et des autres métaux

## Approche « écologique »

### [ EXEMPLE DU RITORD (FRANCE)

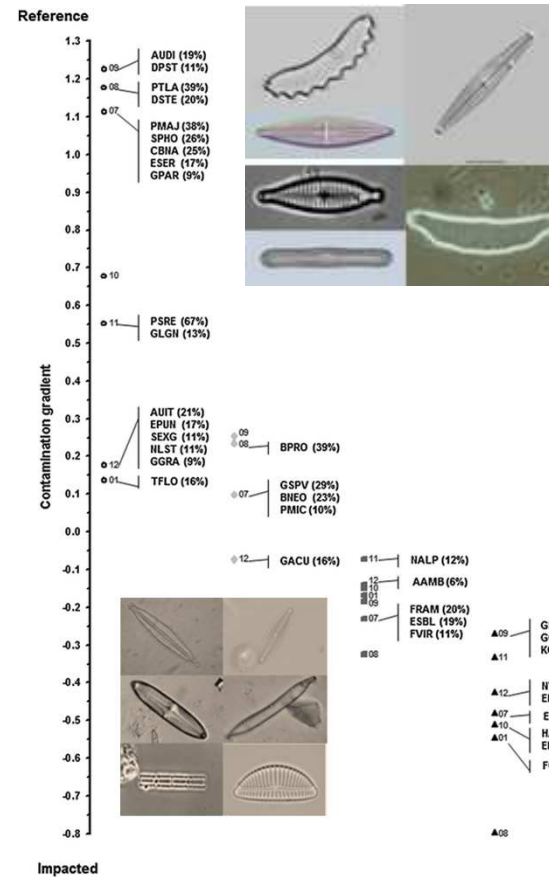
■ **Pas d'effet visible sur la biodiversité** [richesse spécifique (S = 55 à 74), diversité (H' = 2,5 à 3,2)] ni le fonctionnement [biomasse, photosynthèse]

■ **Différences dans la composition de la communauté** [espèces indicatrices]

■ **Attribuées aux variables caractérisant les effluents « dans leur ensemble »** : U, mais aussi Cl, Ba, Al, Mn...

➔ **Rôle de l'uranium par rapport aux autres variables** environnementales et interactions entre substances ?

Herlory et al. (2013) Ecotoxicology



Variable	$\rho_s$
<i>Corrélations individuelles</i>	
Cl	0.466***
U <sub>diss</sub>	0.377***
Ba <sub>diss</sub>	0.321***
ORP (redox)	0.294***
Conductivity	0.273**
Al <sub>acc</sub>	0.258**
Mn <sub>diss</sub>	0.270**
Ba <sub>acc</sub>	0.250**
TIC	0.151**
Na	0.165**
Fe <sub>acc</sub>	0.249**
NH <sub>4</sub>	0.176**
Temperature	0.168*
Mn <sub>acc</sub>	0.188*
Fe <sub>diss</sub>	0.211*
pH	0.165*
Flow	0.088*
TOC, SPM, O <sub>2</sub> , Al	NS

\*\*\*  $p \leq 0.001$ ; \*\*  $p \leq 0.01$ ; \*  $p \leq 0.05$

## Approche « écologique »

### [ AU-DELÀ DES CORRÉLATIONS ?

**Généralisation de la biodisponibilité des métaux aux mélanges** (WHAM-FTOX : biodisponibilité par analogie avec la complexation sur les acides humiques)

Toxic Function: 
$$F_{TOX} = \sum \alpha_M v_M$$

$\alpha_M$  : quantité de métal  $M$  accumulé ( $mmol.g^{-1}$ )

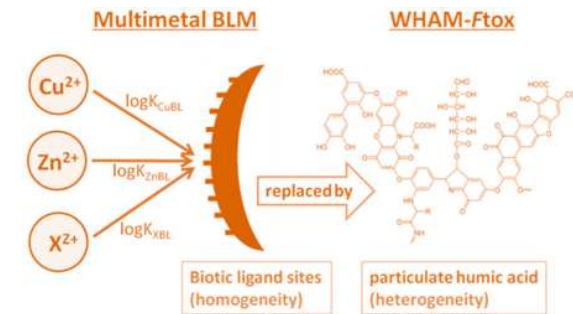
$v_M$  : coefficient de toxicité

Toxic Response: 
$$TR = \frac{F_{TOX} - F_{TOX,LT}}{F_{TOX,UT} - F_{TOX,LT}}$$

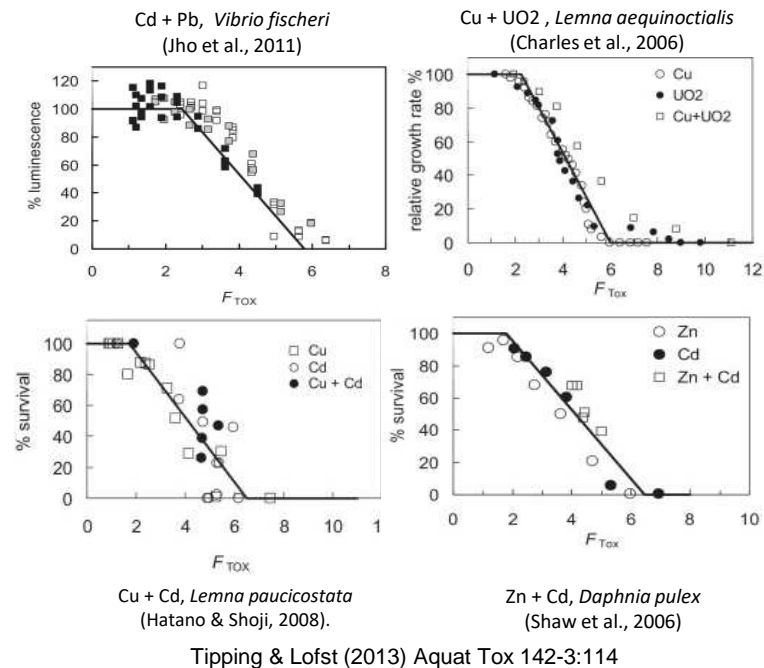
$F_{TOX,LT}$  : lower threshold (pas d'effet)

$F_{TOX,UT}$  : upper threshold (effet maximum)

→ **potentiel descripteur intégré des effets des métaux traces (dont l'uranium)** pour les études écologiques (mais encore peu développé)



Qui et al (2016). Environ. Sci. Technol. 50, 2, 1014–1022



## Conclusion

### [ L'ÉCOTOXICITÉ DE L'URANIUM...

- Dominance de la **toxicité chimique** (métal trace)  
ne pas oublier la contribution des descendants/isotopes particulières
- Connaissances principales sur l'écotoxicité en **eau douce**  
(peu par exposition aux sédiments ou par voie trophique)
- **Biodisponibilité** très influencée par la **spéciation chimique** de l'U  
Données convergentes sur les espèces chimiques à considérer, **connaissances encore partielles** : manque de données chroniques, peu de réalisme dans les calculs de spéciation (colloïdes, matière organique...)
- **Détermination d'une NQE** à l'étude dans le cadre de la DCE  
Nécessite un consensus sur les **données d'écotoxicité critiques à considérer**  
et sur les **choix méthodologiques** (cible de protection critique, traitement statistique, facteur de sécurité)
- **Contamination multiple** (la norme plutôt que l'exception ; ex. mines)  
méthodologies pour l'**évaluation du risque cumulé (a priori)**, **pas d'interactions pharmacodynamiques fortes** (synergie/antagonisme), mais l'attribution univoque des effets écologiques à l'U reste complexe
- Complémentarité des approches « **écotoxicologique** » et « **écologique** » avec l'approche « **substance** »



A Becquet (2017)  
<https://dumas.ccsd.cnrs.fr/dumas-01662196/document>

# Merci pour votre attention



<https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/>

**Rodolphe GILBIN**  
rodolphe.gilbin@irsn.fr