

Ecotoxicologie de l'U dans un contexte de contamination multiple des milieux aquatiques

**Rodolphe GILBIN, Laureline FEVRIER, Olivier SIMON,
Karine BEAUGELIN-SEILLER, Olivier ARMANT**

Service de recherche sur les transferts et les effets
des radionucléides sur les écosystèmes
IRSN/ PSE-ENV/SRTE - Cadarache BP-3, Bat-159
F-13115 Saint-Paul-Lez-Durance
rodolphe.gilbin@irsn.fr

L'uranium (U) est présent dans les principales composantes des écosystèmes du fait de son origine naturelle dans les formations géologiques sous-jacentes. L'activité humaine, notamment associée à l'exploitation du minerai d'U, au cycle du combustible ou d'autres activités industrielles (ex. industrie des engrais phosphatés et leur utilisation) peut être à l'origine d'une remobilisation dans les eaux de surface et les sédiments (IRSN, 2012).

Les effets adverses de l'U sur les organismes vivants sont initiés par différents événements moléculaires liés à la capacité de l'U à former des espèces réactives de l'oxygène (dommages mitochondriaux, stress oxydatif) et à ses propriétés mimétiques moléculaires (affinité pour les sites riches en phosphore : protéines phosphorylées, ADN, ATP...). La toxicité radiologique de l'U ne devient importante à considérer que pour des formes d'U enrichi en isotope 235 (Mathews et al. 2009), ou du fait de la contribution des descendants dans la chaîne de l'U235 à la dose radiologique (Beaugelin et al., 2016).

Les connaissances relatives à l'écotoxicité chronique de l'U en eau douce couvrent essentiellement trois taxons (algues, crustacés et poissons), auxquels s'ajoutent quelques rares données sur amphibiens, mollusques et cnidaires, soit au total environ 50 données d'écotoxicité chronique (Février et al., 2013). Ces données permettent d'estimer des concentrations prédites sans effet (PNEC) pour les différents organismes vivants, de l'ordre du µg/L à plusieurs dizaines de mg/L selon les organismes aquatiques considérés (ex. Sheppard et al., 2005).

Les connaissances scientifiques sur l'écotoxicité des substances chimiques sont utilisées en écotoxicologie réglementaire pour l'évaluation des risques pour les écosystèmes. Les méthodes les plus souvent utilisées sont dérivées de l'approche de l'US EPA (US-EPA, 1998). En Europe, les Normes de Qualité Environnementale (NQE) définies dans le contexte réglementaire de la Directive Cadre sur l'Eau (DCE 2000/60/EC) considèrent différents objectifs de protection que sont les communautés pélagiques (eaux douces et marines) et benthiques (sédiments), des prédateurs supérieurs de ces écosystèmes (vis-à-vis de l'empoisonnement secondaire) et de la santé humaine (via l'eau de boisson et l'ingestion des produits issus de la pêche). Afin de protéger le compartiment le plus sensible, une NQE globale retient la plus faible des normes de qualité « spécifiques » déterminée pour chaque compartiment (Ineris, 2011). Cette méthodologie a été appliquée dans la dernière décennie par six états européens dans le but de déterminer une NQE pour l'U (Vorkamp et Sanderson, 2016). Les valeurs retenues varient de 0,015 µg/L (Danemark) à 24 µg/L (République tchèque), appliquées selon l'approche du risque ajouté (i.e. en incrément du fond géochimique). La forte variabilité des valeurs retenues est le reflet de différents choix méthodologiques, mais surtout des fortes incertitudes de connaissance sur l'écotoxicité de l'U pour certains compartiments (empoisonnement secondaire, sédiments) ou au sein d'un compartiment (forte variabilité de l'écotoxicité aquatique selon l'organisme et les caractéristiques physico-chimiques des eaux).

La dernière version du Guide européen sur la dérivation de la NQE recommande explicitement de prendre en considération pour les métaux leur spéciation chimique dans l'évaluation de leur écotoxicité (Tack, 2012). Cette considération est essentielle pour l'U, son écotoxicité pour les organismes aquatiques variant d'au moins 3 ordres de grandeurs selon les conditions physico-chimiques des eaux (très forte influence du pH, rôle des cations compétiteurs (Ca, Mg) et de la complexation par la matière organique naturelle). L'ion uranyle UO_2^{2+} est l'espèce dominante dans les eaux de surface en milieu oxydant et acide. C'est l'espèce chimique 'libre' considérée comme indicatrice de la biodisponibilité pour les organismes aquatiques (Markish, 2002 ; Gilbin, 2013). A pH alcalin, apparaissent les formes hydroxylées puis carbonatées. La spéciation de l'uranyle en eau douce est influencée par la concentration en ligands organiques - en particulier les substances humiques qui forment des complexes et colloïdes encore partiellement décrits à ce jour. En rivière, plus de 90 % de l'U peut être associé à des complexes dissous (inorganiques ou organiques) et à la fraction colloïdale (colloïdes de fer, matière organique naturelle), ce qui en limite sa biodisponibilité (STAR D4.2). Ces connaissances sur la biodisponibilité de l'U ont permis d'établir des valeurs de références spécifiques conditionnelles pour la protection des organismes pélagiques d'eau douce, variant de 0,3 à 30 $\mu\text{g/L}$ selon les propriétés physico-chimiques des eaux considérées (IRSN, 2015 ; Beaugelin et al., 2015).

Ainsi, les connaissances scientifiques sur l'écotoxicité de l'U accumulées depuis plus de trois décennies ont principalement contribué à développer une approche « chimique » (ou « substance ») classique, permettant de caractériser le risque par le calcul d'un ratio entre d'une part la concentration d'exposition des organismes à l'U, et d'autre part le seuil de concentration au-dessus duquel des effets néfastes sur les populations d'organismes sont attendus (PNEC ou NQE, modulée par les conditions de biodisponibilité dans le milieu). Cette approche a l'avantage de se reposer sur un cadre méthodologique clair, avec l'utilisation des informations disponibles sur l'écotoxicité de l'U, utile pour caractériser des impacts dans des situations existantes, mais aussi pour prévoir les impacts *a priori*. Cependant, elle atteint ses limites pour fournir des indications sur l'état de santé réel des écosystèmes dans des conditions d'exposition réalistes.

Les études écotoxicologiques (sur des matrices environnementales) et écologiques de terrain sur des sites contaminés à l'U sont peu nombreuses. Des effets de la contamination des sites miniers d'U ont pu être mis en évidence par l'utilisation de bioessais (test de l'écotoxicité des matrices environnementales au laboratoire – cf. synthèse de Lourenço et al, 2016) ou la mise en cage d'organismes comme des poissons (ex. Le Guernic et al. (2016) ayant mis en évidence des réponses sur le système antioxydant et immunitaire, l'activité acétylcholinestérase et des paramètres biométriques). A une autre échelle, l'étude d'assemblages de diatomées en aval de rejet d'effluents miniers d'U traités (Herlory et al., 2013) a permis de mettre en évidence des changements de structure de ces communautés. Cependant, en aval de ces sites uranifères, outre la présence d'U, la contamination est caractérisée par la présence de métaux naturellement présents dans les zones (manganèse et fer) ainsi que des métaux ajoutés pour précipiter l'U et descendants (aluminium et baryum). L'attribution des modifications physiologiques ou écologiques de manière univoque à l'U est redue complexe par ce contexte de multi-contamination. Des développements méthodologiques permettant d'envisager de décrire l'exposition à l'U et l'écotoxicité en présence d'autres métaux toxiques ont pu être proposées (Gilbin (2013), Lofts et al. (2015), Margerit (2015) – approche de type 'Biotic Ligand Model' et 'Dynamic Energy Budget'). Elles sont toujours en cours de développement (RADONORM, approche 'Adverse Outcome Pathway'), et n'ont pas encore été utilisées pour réinterpréter de manière plus robuste les données écotoxicologiques et écologiques acquises *in situ*.

Références bibliographiques

- Beaugelin-Seiller K., Simon O., Gilbin R., Garnier-Laplace J., Février L. (2015). Is enough information available to derive an overall EQS for uranium in French freshwaters, according to European Guidelines?. Uranium – Past and Future Challenges. Proc. 7th Int. Conf. on Uranium Mining and Hydrogeology. Border J.M. and Arab A. (eds.), pp55-62. https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-319-11059-2_6
- Beaugelin-Seiller R., Goulet R., Mihok S., Beresford N.A. (2016). Should we ignore U-235 series contribution to dose? J. Environ. Radiol. 151-1:114-125. <https://hal.science/hal-02557547>
- Février L., Beaugelin-Seiller K., Gilbin R. (2013). Intégration opérationnelle de la matière organique dans la détermination des valeurs génériques et conditionnelles des PNEC_{eau} de l'uranium. Application au domaine physico-chimique des eaux douces françaises. Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2013-0041
- Gilbin R. (2013). Biodisponibilité des éléments traces métalliques et des radionucléides en milieu aquatique continental. Implications pour l'évaluation du risque écologique dans un contexte de multi-contamination. Mémoire d'Habilitation à Diriger des recherches, Université Montpellier 1. <https://hal-irsrn.archives-ouvertes.fr/tel-02929478>
- Herlory O., Bonzom J.-M., Gilbin R., Frelon S., Fayolle S., Delmas F., Coste M. (2013). Use of diatom assemblages as biomonitor of the impact of treated uranium mining effluent discharge on a stream: case study of the Ritord watershed (Center-West France). Ecotoxicology 22:1186-1199. <https://hal.science/hal-02598916/>
- Ineris (2011). Méthodologie utilisée pour la détermination de normes de qualité environnementale (NQE). Rapport d'étude DRC-11-118981-08866. https://substances.ineris.fr/uploads/content/Methodologie_NQE.pdf
- IRSN (2012). Uranium naturel et environnement. Fiche radionucléide. <https://www.irsrn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/environnement/Pages/Uranium-naturel-environnement.aspx>
- IRSN (2015). Valeur Guide Environnementale (VGE) et valeurs de référence spécifiques (QS) pour l'uranium. Synthèse et éléments pour l'application aux eaux douces françaises. Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2015-004. https://www.irsrn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/Documents/environnement/IRSN_VGE-QS-Uranium-Eaux-Source_PRP-ENV-2015-04.pdf
- Le Guernic et al. (2016). Effets sublétaux d'une contamination métallique liée à des rejets miniers uranifères sur l'épinoche à trois épines (*Gasterosteus aculeatus* L.). Implication dans la susceptibilité envers un stress biologique. Thèse de doctorat, rapport IRSN/IRSN-2016/186. https://www.irsrn.fr/FR/Larecherche/Formation_recherche/Theses/Theses-soutenues/DEI/Documents/2015-These-Le_Guernic.pdf
- Lofts S., Lofts, Horemans N., Teien H.C., Février L., Gilbin R., Svendsen C., Vandenhove H. (2015). Tools for assessing availability and exposure in a multiple contaminant context: the scientific basis and associated tools to assess radionuclide availability and exposure under multiple contaminant conditions. Février L. (ed.). STAR (Contract Number:Fission-2010-3.5.1-269672) DELIVERABLE 4.2, 28/05/2015.
- Lourenço J., Mendo S., Pereira R. (2016). Radioactively contaminated areas: Bioindicator species and biomarkers of effect in an early warning scheme for a preliminary risk assessment. J Hazardous Materials 317:503-542. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2016.06.020>
- Margerit A. (2015). Etude des effets combinés de l'uranium et du cadmium chez le nématode *Caenorhabditis elegans*. Thèse de doctorat, Université Montpellier 1. <https://www.theses.fr/2015MONT3509>
- Markich S.J. (2002). Uranium speciation and bioavailability in aquatic systems: an overview. Scientific World Journal. 15-2:707-29. <https://doi.org/10.1100/tsw.2002.130>
- Mathews T., Beaugelin-Seiller K., Garnier-Laplace J., Gilbin R., Adam C., Della-Vedova C. (2009). A probabilistic assessment of the chemical and radiological risks of chronic exposure to uranium in freshwater ecosystems. Environ. Sci. Technol. 43-17 :6684–6690. <https://doi.org/10.1021/es9005288>
- RADONORM project. Towards effective radiation protection based on improved scientific evidence and social considerations - focus on radon and NORM. <https://www.radonorm.eu/>
- Sheppard S.C., Sheppard M.I., Gallerand M.-O., Sanipelli B. (2005). Derivation of ecotoxicity thresholds for uranium. J. Environ. Radiol. 79-1:55-83. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.05.015>
- Tack K. (2012). Prise en compte de la biodisponibilité des métaux selon la DCE. Guide méthodologique. Rapport DRC-12-126834-07511A, Onema, Ineris. <https://www.ineris.fr/sites/ineris.fr/files/contribution/Documents/DRC-12-126834-07511A%20-%20biodisponibilit%C3%A9%20des%20m%C3%A9taux.pdf>
- US-EPA (1998). Guidelines for Ecological Risk Assessment. EPA/630/R-95/002F, April 1998. https://www.epa.gov/sites/default/files/2014-11/documents/eco_risk_assessment1998.pdf
- Vorkamp K. et Sanderson H. (2016). EQS variation study: European Environmental Quality Standards (EQS) Variability Study. Analysis of the variability between national EQS values across Europe for selected Water Framework Directive River Basin Specific Pollutants. Aarhus University, DCE – Danish Centre for Environment and Energy, 96 pp. Scientific Report from DCE – Danish Centre for Environment and Energy No. 198. <http://dce2.au.dk/pub/SR198.pd>