

Plutonium

et environnement

**FICHE
RADIONUCLÉIDE**

Cette fiche résume le comportement de l'élément chimique dans les principaux compartiments des écosystèmes terrestres et aquatiques, sous les deux hypothèses suivantes.

- La discrimination isotopique est négligeable, ce qui est vérifié pour la plupart des éléments traités.
- Lorsque l'élément possède des isotopes stables, l'analogie de comportement entre ses isotopes stables et radioactifs est admise implicitement, sachant toutefois que pour les éléments existant à l'état naturel, la forme chimique et le milieu d'émission des rejets anthropiques sont susceptibles d'impliquer des voies et processus de transfert autres que ceux identifiés pour l'élément stable naturel.

Le ou les isotopes radioactifs désignés dans l'intitulé de la fiche correspondent aux radionucléides d'importance radioécologique majeure, au sens des quantités et de la rémanence dans l'environnement, d'autres isotopes, radioactifs ou stables, pouvant être cités à titre complémentaire. Les informations, volontairement simplifiées, sont destinées à refléter l'état des connaissances sur le sujet à la date de mise à jour et à proposer des valeurs pour les principaux paramètres radioécologiques usuels permettant une estimation des transferts dans l'environnement et plus particulièrement au sein de la chaîne alimentaire.

**239,240
Pu
94**

RÉDACTION :
K. Beaugelin-Seiller,
B. Fraysse,
S. Roussel-Debet

VÉRIFICATION :
C. Fortin

DATE DE RÉDACTION :
26/06/02

RÉVISION :
K. Beaugelin-Seiller,
D. Boust,
P. Germain,
S. Roussel-Debet

VÉRIFICATION :
C. Colle

DATE DE RÉVISION :
01/09/04

CARACTÉRISTIQUES

CHIMIQUES

Le plutonium, deuxième élément de la série des actinides transuraniens, est un métal argenté qui se transforme au contact de l'air en oxyde de plutonium. Il peut se trouver en solution sous cinq états d'oxydation : III, IV (état prépondérant et le plus stable), V, VI et VII, l'état VII restant limité à des conditions de forte basicité en présence d'oxydants (Ansoborlo *et al.*, 2003). Signalons la mise en évidence (Madic, 2000) de la possibilité d'oxydation spontanée par l'air humide de PuO_2 en un « superoxyde » $\text{Pu(VI)}\text{O}_{2+x}$ susceptible de se dissoudre et de passer sous forme Pu(IV) et Pu(VI) . Des travaux sont en cours pour tenter de déterminer les constantes thermodynamiques et cinétiques des équilibres entre ces différentes formes (Haschke et Oversby, 2002) et leur mobilité potentielle (Fjeld *et al.*, 2003).

NUCLÉAIRES

Les 15 isotopes connus du plutonium sont tous radioactifs. Les principaux sont émetteurs alpha, notamment le plus abondant, ^{239}Pu . Le ^{241}Pu est émetteur bêta.

Le plutonium est classé dans la catégorie de radiotoxicité 1 (très forte).

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu
Période radioactive	87,76 ans	24 130 ans	6 567,5 ans	14,410 ans
Activité massique (Bq.g^{-1})	$6,34 \times 10^{11}$	$2,295 \times 10^9$	$8,40 \times 10^9$	$3,81 \times 10^{12}$
Émission(s) principale(s) par désintégration (rendement d'émission %)	α 5,499 MeV (71,04 %)	α 5,156 MeV (73,30 %)	α 5,168 MeV (72,90 %)	β^- 20,81 keV (99,99 %)
	5,457 MeV (28,84 %)	5,144 MeV (15,10 %)	5,124 MeV (27,00 %)	
		5,106 MeV (11,45 %)		

(Nuclides 2000, 1999)

ORIGINES

NATURELLE

Le plutonium est en quasi-totalité d'origine artificielle.

ARTIFICIELLE

Trois sources principales ont disséminé du plutonium dans l'environnement : les essais d'armes nucléaires, les rejets d'installations nucléaires et les accidents.

Entre 1945 et 1975, les essais nucléaires atmosphériques ont disséminé environ 13 PBq de $^{239,240}\text{Pu}$, dont 80 % dans l'hémisphère Nord, 170 PBq de ^{241}Pu et 0,3 PBq de ^{238}Pu , dont 60 % dans l'hémisphère sud (UNSCEAR, 1982). Aux retombées issues de ces essais s'ajoutent celles d'accidents de satellites alimentés en électricité d'origine nucléaire, tel le SNAP-9A, à l'origine de la dissémination dans l'hémisphère sud d'environ 100 TBq de ^{238}Pu en 1964. En outre, deux accidents d'avions B52 ont donné lieu à une dissémination notable de plutonium 239 : 0,5 TBq, en 1966, à Palomarés (Espagne) et 0,9 TBq en 1968, à Thulé (Groenland).

D'autre part, les polygones d'essais d'armes ont été contaminés en plutonium. Outre les îles de Bikini et Eniwetok (*Micronésie*) qui ont reçu environ 0,1 TBq de plutonium de 1946 à 1958, le Nevada Test Site (USA) a été fortement contaminé : jusqu'en 1961, environ 6 TBq de $^{239,240}\text{Pu}$ ont été dispersés (Despres, 1995).

L'accident de Tchernobyl a dispersé du plutonium à proximité du réacteur, en partie sous forme de « particules chaudes » : ces rejets sont estimés à environ 35 TBq de ^{238}Pu , 30 TBq de ^{239}Pu , 42 TBq de ^{240}Pu et 6 000 TBq de ^{241}Pu . Le dépôt total de ^{239}Pu a dépassé 4 kBq.m⁻² dans la région de Gomel, dans la zone des 30 km autour du site (AEN-OCDE, 2002). En 2000, dans les 30 premiers centimètres des sols, les activités y étaient encore présentes aux environs de 7,2 PBq de ^{238}Pu , 15 TBq — et 18 TBq de ^{241}Am , issu de la décroissance de ^{241}Pu — (Kashparov *et al.*, 2003).

Les usines du cycle du combustible génèrent des rejets de nature et d'activité variables. Ainsi, de 1954 à 1989, les installations du site de production de matériel nucléaire (militaire et civil) de la rivière Savannah (USA) ont rejeté 140 GBq de plutonium dans l'atmosphère et 23 GBq sous forme liquide (Carlton *et al.*, 1996). Parallèlement, les usines de retraitement du combustible usé de Trombay (Inde), La Hague et Marcoule (France) et surtout Windscale (Sellafield, Angleterre) ont émis et/ou émettent du plutonium dans leurs rejets de routine, pour l'essentiel sous forme d'effluents liquides.

Dans le milieu marin, le plutonium provient de diverses origines. Actuellement, les rejets les plus significatifs proviennent des usines de retraitement ; la diminution des quantités rejetées induit, dans le milieu naturel, des concentrations en diminution, et inférieures aux concentrations d'actinides d'origine naturelle.

Les retombées atmosphériques globales et locales ont marqué la totalité des mers et des océans ; il s'y ajoutent les essais dans l'eau en mers arctiques. Les usines de retraitement des combustibles rejettent en routine, directement en mer, des effluents, marquant par exemple l'Atlantique du nord est, la mer d'Irlande, la Manche, la mer du Nord. Les rivières peuvent drainer vers la mer du plutonium provenant des retombées, mais aussi des effluents d'installations nucléaires, comme, par exemple, la Columbia River vers le Pacifique du nord est et le Rhône en mer Méditerranée. Des déchets radioactifs ont été stockés à certaines époques dans des mers et océans (Atlantique, Arctique, mer du Japon...) et représentent des sources potentielles de plutonium. Le démantèlement d'installations nucléaires ou de navires utilisant l'énergie nucléaire peut constituer une source de radionucléides pour les environnements côtiers (zones des mers arctiques par exemple).

L'accident de Tchernobyl (contamination de la mer Noire) et celui de Windscale en 1956 sont notamment à l'origine de la présence de plutonium dans le milieu marin, par la voie atmosphérique. Des contaminations sont imputables à des accidents de sous-marins (océan Atlantique, le Thresher en 1963 ; mer de Norvège et mers arctiques, le Komsomolets en 1989, le Koursk en 2000...), ainsi qu'à des accidents de satellites ou avions (SNAP-9A, Thulé, Palomarés), avec lessivage des sols et transfert vers la mer des radioéléments.

La définition de l'origine du plutonium repose souvent sur la détermination des rapports isotopiques spécifiques à une source : $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de l'ordre de 0,04 pour les retombées des essais militaires et de 0,2 à supérieur à 1 pour les rejets industriels ; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ de l'ordre de 0,18 pour les retombées des essais militaires et de 0,42 pour Tchernobyl ; $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de l'ordre de 30 pour les usines de retraitement et de 16 pour des retombées de tests militaires. Ces données sont utiles pour les études radioécologiques, mais également pour la connaissance océanographique, comme la cinétique du déplacement des particules sédimentaires.

CONCENTRATIONS DANS L'ENVIRONNEMENT ET MÉTROLOGIE

En Europe, le dépôt de $^{239,240}\text{Pu}$ imputable aux essais atmosphériques est estimé à environ 50 Bq.m^{-2} , dont résulte une faible contamination de l'environnement terrestre : 5 à 2 000 $\text{mBq.kg}^{-1}\text{sec}$ dans les sols (concentrations inférieures au picogramme par kg de sol) et 0,005 à 50 $\text{mBq.kg}^{-1}\text{sec}$ dans les végétaux terrestres (Grauby *et al.*, 1986). Pour ce qui concerne Tchernobyl, le dépôt de $^{239,240}\text{Pu}$ a été estimé à 10 Bq m^{-2} à Monaco et $0,05 \text{ Bq m}^{-2}$ à Munich (Holm *et al.*, 1988 ; Rosner *et al.*, 1997).

Dans le Bas-Rhône, la concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ du cours d'eau, intégrant le drainage des dépôts des retombées anciennes sur le bassin versant et les rejets d'effluents de l'usine de retraitement de Marcoule, a varié de 0,3 à $0,03 \text{ Bq.m}^{-3}$ de 1961 à 1998, sa valeur maximale étant de $1,3 \text{ Bq.m}^{-3}$ en 1965 (Duffa, 2001). Dans les eaux de la Seine, les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ sont de l'ordre de 0,5 à $0,01 \text{ Bq.m}^{-3}$ (années 1980 — 1994) ; par fort débit, elles peuvent descendre à moins de $0,01 \text{ Bq.m}^{-3}$ (Garcia, 1997).

Dans les océans, l'inventaire des $^{239,240}\text{Pu}$ représente 10 PBq (Aarkrog, 2003). En Manche, les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ au cours des dix dernières années se situent en général entre 5 et 30 mBq.m^{-3} ; des concentrations de quelques centaines de mBq.m^{-3} ont été mesurées à proximité immédiate de l'émissaire de l'usine de La Hague, pour les isotopes ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$. En mer d'Irlande, les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'eau de mer décroissent exponentiellement en fonction de la distance à l'émissaire de l'usine de Sellafield. Dans les années 1980, elles variaient de plusieurs Bq.m^{-3} à environ $0,1 \text{ Bq.m}^{-3}$ à 300 km de l'émissaire (McKay et Pattenden, 1993 ; Boust *et al.*, 1996). Dans les eaux de l'Atlantique, les concentrations se situent entre 6 et 9 mBq.m^{-3} ; aux latitudes nord moyennes, la concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ dans les eaux atlantiques est de l'ordre de 7 mBq.m^{-3} ; elle dépasse rarement 3 mBq.m^{-3} dans l'Atlantique Sud (Holm *et al.*, 1991 ; Bourlat *et al.*, 1996).

Les isotopes 239, 240 et 238 du plutonium sont mesurés dans les échantillons de l'environnement par spectrométrie alpha — obligatoirement précédée d'une séparation radiochimique — avec un seuil de détection de l'ordre de $0,1 \text{ mBq}$ par échantillon (Grenaut *et al.*, 1983). Pour des échantillons d'origine expérimentale (ayant donc une charge en plutonium suffisante par rapport au bruit de fond des radionucléides naturels), une mesure en scintillation liquide est possible avec une limite de détection de l'ordre de 10 mBq par échantillon pour les ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et d'environ 50 mBq par échantillon pour le ^{241}Pu . La discrimination des isotopes peut, en outre, être réalisée par des mesures spectroscopiques comme l'ICP-MS (Ketterer *et al.*, 2004 ; Agarande *et al.*, 2004).

MOBILITÉ ET BIODISPONIBILITÉ EN MILIEU TERRESTRE

SOLS

Très schématiquement, en solution, au voisinage de pH 7, l'état le plus stable du plutonium est Pu(IV), susceptible d'être réduit en Pu(III) en deçà de -200 mV et d'être oxydé en Pu(V) ou Pu (VI) au delà de 600 mV (Choppin et Morgenstern, 2001). Dans les sols en conditions normales, la forme Pu(IV)O_2 , très peu soluble et peu mobile, est considérée comme la plus fréquente. Cependant, l'existence de la forme Pu(V), qui serait plus soluble que Pu(IV), annonce l'éventualité d'une migration accrue du plutonium dans des sols hyperbasiques, en présence de carbonates ou en l'absence de conditions réductrices (Runde *et al.*, 2000).

La répartition du plutonium dans les fractions provenant d'extractions séquentielles met en évidence sa faible proportion dans les fractions considérées comme hydrosolubles et échangeables, supposées facilement mobilisables (Skipperud *et al.*, 2000). Des extractions de solution du sol montrent que l'on y trouve 0,04 % à

0,4 % de plutonium et qu'il reste lié à des acides organiques de forte taille moléculaire (Livens et Singleton, 1991 ; Leonard *et al.*, 1994), voire aux fractions humiques des sols (Lee et Lee, 2000).

La mobilité du plutonium, liée à la formation de complexes mobiles et de pseudo-colloïdes, est particulièrement faible. Les mesures de profil de migration — hors conditions extrêmes, désertiques notamment — mettent en évidence une accumulation du plutonium en surface du sol avec 80 à 95 % de l'activité dans les 10 premiers centimètres du sol (Mboulou *et al.*, 1998 ; Hursthouse et Livens, 1993 ; Lee et Lee, 2000). La vitesse apparente de migration verticale dépend de la forme initiale du plutonium. Elle serait d'environ $0,4 \text{ cm.an}^{-1}$ pour les retombées (Komosa, 1999). Pour le plutonium issu de Tchernobyl, cette vitesse serait de 3×10^{-3} à $5 \times 10^{-2} \text{ cm.an}^{-1}$ à proximité du site (particules chaudes), alors qu'en Europe, elle atteindrait 2 à 4 cm.an^{-1} et diminuerait avec l'augmentation du pH des horizons du sol. Druteikiene *et al.* (1999) ont effectué des essais sur deux sols de pH voisin de 4,4, avec un dépôt surfacique de plutonium sous des formes chimiques différentes ; après environ une année, les vitesses de migration observées se classent dans le sens $\text{PuCl}_4 > \text{Pu}(\text{NO}_3)_4 > \text{PuO}_2$, la majorité du plutonium, quelle qu'en soit la forme initiale, restant toutefois en surface (0-5 cm).

Les phénomènes qui aboutissent à l'immobilisation du plutonium, *i.e.* hydrolyse, adsorption sur les particules argileuses et formation de complexes plus ou moins insolubles avec les carbonates, les acides humiques et les acides organiques simples, sont dominants (Skytte-Jensen, 1980). Les processus d'adsorption - désorption sur les phases solides des sols sont contrôlés par le pH et par la surface spécifique des argiles. Par ailleurs, les hydroxydes de fer, d'aluminium et de manganèse semblent jouer un rôle. En règle générale, pour des sols de conditions physico-chimiques moyennes, la demi-vie du plutonium serait certainement supérieure à 20 - 30 ans dans les horizons superficiels et les facteurs essentiels de son déplacement seraient plus liés à l'activité biologique qu'à des effets physico-chimiques (Coughtrey *et al.*, 1984). Murphy et Tuckfield (1994) ont par exemple montré à Savannah River que le prélèvement par les arbres et le recyclage lié aux chutes des feuilles ramènent en surface des quantités non négligeables de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$. Les auteurs ont calculé qu'après 100 ans, ce recyclage — qui semble constant au cours du temps — enrichirait l'horizon de surface jusqu'à une activité massique égale à environ 10 % de celle de la tranchée de déchets dont il provient initialement.

Par ailleurs, le transport colloïdal du plutonium est actuellement très étudié. Ainsi, la migration, bien plus rapide que présumée, du plutonium dans des sols du Nevada Test Site (NTS) semble imputable à la migration préférentielle de colloïdes d'oxydes de plutonium (Kersting *et al.*, 2000). Lu *et al.* (1998) ont montré l'intensité et la rapidité de la liaison entre plutonium et colloïdes : plus de 90 % du Pu(IV)-colloïdal est fixé en 6 h sur des colloïdes artificiels d'hématite (Fe_2O_3) et la quasi-totalité en 100 heures, avec un K_d de $1 \times 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ et la désorption du plutonium est très faible et très lente (< 0,6 % en 150 jours). Par ailleurs, Bundt *et al.* (2000), lors de l'étude du comportement de $^{239,240}\text{Pu}$ sur un sol brun forestier complanté depuis 60 ans en épicéas et autres arbres, ont montré que la migration de solutés ou de colloïdes dans l'horizon superficiel (< 20 cm) s'effectue essentiellement par les « chemins préférentiels », *via* les pores grossiers.

Le plutonium est susceptible de se complexer avec les substances organiques, notamment les acides humiques et fulviques ou les acides organiques simples (Labonne-Wall *et al.*, 1997) ainsi qu'avec les produits du métabolisme microbien. La stabilité des complexes diminue avec l'augmentation de la force ionique, comme pour d'autres métaux, et avec le pH (Carlsen, 1989). L'analyse du $^{239,240}\text{Pu}$ issu des retombées de Nagasaki dans des sols de Nishiyama montre que 10 % est complexé avec les acides humiques et 1 % avec les acides fulviques. La transformation du plutonium, initialement sous forme d'oxydes thermovitrifiés insolubles puis reincorporé dans des complexes organiques mobilisables, est attribuée à l'action des micro-organismes (Fujikawa *et al.*, 1999). Keith-Roach *et al.* (2000) mettent en évidence sur des sols marécageux saumâtres des environs de Sellafield une relation entre la concentration du $^{239,240}\text{Pu}$ dans les eaux interstitielles et l'activité microbienne ; le plutonium dans ces pseudo-sols est présumé être à l'état (IV) et éventuellement (V), (VI) ou (III).

La corrélation négative entre l'activité microbienne et la dissolution des radionucléides dans les eaux porales est imputable à un phénomène de biosorption sur les membranes cellulaires de la biomasse microbienne. En fin de bloom microbien, cette biosorption suivie de mort cellulaire est susceptible de libérer une grande quantité de composés organiques et de complexes. En outre, certains ligands organiques produits par les micro-organismes

et susceptibles de modifier la mobilisation des actinides tétravalents font depuis quelques années l'objet de recherches particulières, en vue de décontaminer des effluents (Brainard *et al.*, 1992 ; Hersman *et al.*, 1993 ; Neu *et al.*, 2003). En particulier, les sidérophores, tels que les desferrioxamines DFO-E et DFO-B et l'enterobatine présentent une sélectivité remarquable pour le Pu(IV) et sont susceptibles de complexer le Pu(IV), donnant lieu à une forme mobile (Bradley *et al.*, 1999 ; Hoffman *et al.*, 1997 ; Zhao *et al.*, 1999).

Une abondante littérature est consacrée aux coefficients de sorption-désorption (Kd) des transuraniens. Les tendances générales observées sont des corrélations positives entre matière organique et sorption et, pour des teneurs en matière organique faibles, entre pH du sol et sorption. L'analyse statistique effectuée par Page (1999) met en évidence une augmentation du Kd (5 à 3 000 l.kg⁻¹) avec la concentration des carbonates et des argiles. Des essais sur sols agricoles montrent que le Kd varie (300 à 9 600 l.kg⁻¹) en sens inverse de la teneur en sables totaux, une texture fine favorisant la sorption (Roussel-Debet, 2003). La présence de micro-organismes vivants (bactéries sulfato-réductrices) accroîtrait d'un facteur 20 le Kd du plutonium sur de la bentonite (Francis, 2001).

L'effet du plutonium sur la macrofaune du sol a été étudié par Krivolutski *et al.* (1992) à partir d'essais de plein champ sur un chernozem très fortement dopé (6,6 TBq.m⁻²) par du ^{239,240}Pu. Un effet très prononcé mais temporaire est observé : après 3 ans, la population de vers de terre et d'insectes a disparu et celle des micro-arthropodes est réduite d'un facteur 5 ; le retour à l'état initial est observé après 18 ans. Le niveau de contamination des sols étant dans ces tests extrêmement élevé, il est difficile d'en déduire la possibilité d'une toxicité pour des quantités moindres de plutonium.

VÉGÉTAUX

De nombreuses mesures de plutonium *in situ*, avec ou sans suivi expérimental, ont été faites sur des sites contaminés (Adriano *et al.*, 1986 ; Romney *et al.*, 1981). Le transfert aux végétaux est faible et semble décroître dans le sens : *végétation spontanée et prairies* > *végétaux cultivés* > *fruits ou graines*, ce qui est probablement un artéfact lié à la remise en suspension.

La dispersion des valeurs d'origine expérimentale du facteur de transfert racinaire atteint plusieurs ordres de grandeurs comme le montrent les intervalles observés sur les valeurs usuelles rassemblées par l'IAEA (1994).

Les facteurs qui affectent la solubilité et la mobilité du plutonium dans les sols influencent davantage le transfert racinaire aux végétaux que les différences entre les espèces végétales (Romney *et al.*, 1981). L'analyse des facteurs de transfert racinaire a été réalisée par Frissel et Kosler (1989) qui ont estimé un facteur de transfert racinaire standard Tf_{std} pour un délai de 2 ans entre la contamination du sol et la culture et pour un sol de pH 6. Ces facteurs varient entre 1 x 10⁻⁴ et 1 x 10⁻³, selon le végétal. Pour les autres conditions, le facteur de transfert est corrigé par : Tf = Tf_{std} x C_t^(t-2) x C_{pH}^(pH-6), et en tenant compte du délai contamination-récolte (t en an, C_t = 0,67) et du pH du sol considéré (C_{pH} = 0,81). Ceci met en évidence la diminution du facteur de transfert du plutonium avec l'augmentation du pH du sol.

Divers paramètres ont été étudiés, en particulier ceux en relation avec la matière organique. L'augmentation de l'activité biologique du sol tendrait à augmenter le transfert du plutonium par destruction microbienne des complexes et serait à l'origine de l'augmentation de la biodisponibilité du plutonium avec le temps (Nishita, 1981). Pourtant, Adriano *et al.* (1986) n'observent aucune augmentation de la biodisponibilité du plutonium sur une période de 30 ans après un dépôt initial à Oak Ridge Site.

Très peu de travaux expérimentaux ont porté sur le transfert par voie foliaire : Cataldo *et al.* (1981) ont effectué des essais de contamination unique par des aérosols de plutonium nébulisés sur le haricot ; récemment des essais comparatifs (Cs, Sr, Pu, Am) ont été faits à l'IRSN (Henner et Colle, 2003). Les résultats montrent que le plutonium est faiblement incorporé et très peu mobile dans le végétal. Ces résultats ne peuvent cependant pas être traduits en paramètres opérationnels, du fait de conditions expérimentales particulières.

ANIMAUX

Alors que de nombreux travaux concernent l'étude du métabolisme et de la toxicité du plutonium en particulier chez les mammifères, peu d'études récentes quantifient son transfert aux productions agricoles animales. Green *et al.* (1996) montrent que l'ingestion de sol par des moutons en pâture est la voie de contamination majoritaire (du fait de la rétention du plutonium par le sol et de son faible transfert à l'herbe) et qu'il conviendrait de prendre en compte ce transfert en considérant une ingestion de sol à hauteur de 5 % de la matière sèche ingérée et en lui appliquant un coefficient de bio-assimilation de 0,5. Par ailleurs, une étude effectuée par Copplestone *et al.* (1999), en écosystème forestier à proximité de Sellafield et sur un site témoin du Cheshire, fournit quelques données sur le mulot sylvestre (*Apodemus sylvaticus*). Les auteurs évaluent des facteurs de transfert agrégés sol → animal variant entre $3,8 \times 10^{-6}$ et $1,9 \times 10^{-4}$ (Bq.kg⁻¹ d'animal frais par Bq.m⁻² de sol) inférieurs à ceux du césium ($3,2 \times 10^{-5}$ à $7,0 \times 10^{-4}$).

De façon générale, le plutonium, qui présente un faible transfert aux végétaux, voit sa concentration diminuer dans les productions animales, avec des facteurs de transfert l'ordre de 10^{-5} à 10^{-4} j.kg⁻¹ pour le lait et la viande.

PRODUITS TRANSFORMÉS

L'effet des transformations agro-alimentaires des produits agricoles bruts sur leur contamination en plutonium est quasiment inconnu. Signalons que des mesures de plutonium (238 et 239, 240) sur une vingtaine d'échantillons de fromages prélevés en Europe se sont toutes révélées être en dessous de la limite de détection de 0,3 mBq.kg⁻¹ (Froidevaux *et al.*, 2004), signe d'un transfert global négligeable vers les produits laitiers transformés.

MOBILITÉ ET BIODISPONIBILITÉ EN MILIEU AQUATIQUE CONTINENTAL

EAUX

La chimie en solution du plutonium est particulièrement difficile à caractériser, du fait de la multiplicité de ses états d'oxydation, de Pu(III) à Pu(VII). Dans les eaux douces superficielles, les formes insolubles dominent, notamment Pu(IV), même si les états III, V et VI existent (Guillaumont et Adloff, 1992). Les états V et VI correspondent aux formes les plus solubles, alors que les formes III et IV sont généralement associés aux sédiments. La présence de carbonates peut augmenter la solubilité du plutonium, par exemple sous forme de l'anion plutonyl-carbonate. En présence de composés organiques, il peut se former des complexes dont les plus stables sont ceux impliquant Pu(IV) (Métayer-Piret *et al.*, 1981).

En phase dissoute, le plutonium tend à s'associer avec des colloïdes incluant notamment du carbone organique, du fer et de l'aluminium. Cette association peut représenter jusqu'à 60 % du transport dissous de plutonium (Eyrolles et Charmasson, 2004).

SÉDIMENTS

Le plutonium peut s'associer à plus de 95 % à la phase solide (Coughtrey *et al.*, 1984), en se liant à des oxyhydroxydes de fer et de manganèse. Cela a été observé dans le Rhône, où 85 % du plutonium est associé aux particules (Eyrolles et Charmasson, 2004). L'adsorption du plutonium paraît faiblement réversible, du fait de processus de re-précipitation, d'hydrolyse et de formation de colloïdes. La concentration en plutonium des sédiments est très variable, de non détectée à 4×10^3 Bq.kg⁻¹ (Coughtrey *et al.*, 1984). Le plutonium présent en eau douce un Kd moyen de 10^5 l.kg⁻¹ en conditions oxydantes (Onishi *et al.*, 1981). Toutefois, ce paramètre peut

présenter des variations de trois ordres de grandeur de part et d'autre de sa valeur moyenne, notamment en fonction de la texture et de la minéralogie des sédiments ainsi que des conditions de pH et d'oxydo-réduction.

VÉGÉTAUX

De façon générale, le transfert aux compartiments biotiques n'est pas très documenté. Comme pour les composés abiotiques, le mécanisme principal de contamination des organismes vivants semble être l'adsorption. Pour les plantes, la contamination est essentiellement localisée en surface de l'organisme. Les concentrations de plutonium rapportées dans les végétaux d'eau douce sont extrêmement variables, de 10^{-2} à 10^4 Bq.kg $^{-1}$ sec (Coughtrey *et al.*, 1984).

ANIMAUX

Pour les poissons, la gamme de variation des concentrations de plutonium s'étend de 10^{-6} à 10^2 Bq.kg $^{-1}$ frais. Les organes cibles principaux sont le squelette et le foie, alors que les muscles présentent en général les concentrations les plus faibles. Le facteur de concentration des invertébrés est estimé à environ 100 l.kg $^{-1}$ alors qu'il varie entre 10^4 et 10^5 l.kg $^{-1}$ pour les plantes (Coughtrey *et al.*, 1984). Chez les poissons, il est lié au niveau trophique de l'espèce considérée et diminue lorsque celui-ci augmente. Le transfert par voie alimentaire n'est pas ou peu documenté ; une unique référence bibliographique (Emery *et al.*, 1981) fait état d'un transfert poisson (bluegill) → poisson (blackbass), la valeur, exprimée par rapport au poids frais, du facteur correspondant étant de $3,6 \times 10^{-2}$.

MOBILITÉ ET BIODISPONIBILITÉ EN MILIEU MARIN

EAUX

Dans l'eau de mer, le plutonium peut exister simultanément sous quatre états d'oxydation (III à VI). La forme Pu(V) est dominante (PuO_2^+) ; la forme Pu(IV) est représentée par l'espèce hydrolysée et réduite Pu(OH)_4 (Nelson *et al.*, 1984 ; Morse et Choppin, 1986 ; Orlandini *et al.*, 1986 ; Choppin et Kobashi, 1990). Le passage de la forme Pu(IV) sous laquelle le plutonium est rejeté en mer par les usines retraitement de combustibles usés, à la forme Pu(V), la plus stable dans l'eau de mer, est un processus lent. Il faut environ 2 semaines pour que l'équilibre (pour lequel le rapport Pu(V)/Pu_{total} est d'environ 0,8) soit atteint (Boust *et al.*, 1996).

La présence d'agents complexants, comme ceux contenus dans la matière organique dissoute, a une très forte influence sur la spéciation du plutonium dissous. En présence d'acides humiques, le plutonium est efficacement réduit (Garcia *et al.*, 1996) ; ce processus explique le comportement non conservatif de cet élément dans les estuaires ou les fjords.

MATIÈRES EN SUSPENSION

Les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ dans les matières en suspension dans l'eau de mer sont comprises entre 1 et 10 Bq.kg $^{-1}$ en Manche ; en Mer d'Irlande, elles décroissent exponentiellement vers le nord passant de quelques milliers de Bq.kg $^{-1}$ à proximité de l'émissaire de l'usine de Sellafield à quelques dizaines de Bq.kg $^{-1}$ à 200 km au nord de l'émissaire (McKay and Pattenden, 1993).

Le plutonium montre une très forte affinité pour les particules sédimentaires. Des coefficients de partition de l'ordre de 10^5 — 10^6 l.kg $^{-1}$ ont été souvent rapportés dans l'eau libre (Mitchell *et al.*, 1995).

SÉDIMENTS

Dans les sédiments sableux de la Manche, les concentrations en $^{239,240}\text{Pu}$ et en ^{238}Pu dépassent rarement 1 et 0,8 Bq.kg $^{-1}$, respectivement, à comparer avec 0,3 et 0,008 Bq.kg $^{-1}$ hors de toute influence industrielle (Boust, 1999). En mer d'Irlande, ces concentrations ont dépassé 1 000 Bq.kg $^{-1}$ dans les sédiments marins proches de l'émissaire, et même 10 000 Bq.kg $^{-1}$ dans les sédiments de l'estuaire de l'Esk.

Les concentrations en plutonium dans les sédiments dépendent de la surface spécifique, donc, en premier lieu, de l'abondance et de la nature de la fraction la plus fine, souvent riche en minéraux argileux. Dans un site donné, elles peuvent varier d'au moins un ordre de grandeur entre des sédiments sableux et des sédiments vaseux.

De nombreux travaux se sont attachés à déterminer les phases porteuses du plutonium dans les sédiments (McDonald *et al.*, 2001). Ils ont en commun de sous-estimer fortement la proportion de plutonium faiblement lié aux particules. Des études récentes démontrent qu'environ 70 % du plutonium contenu dans des sédiments marins peuvent être en position échangeable et/ou liés à des phases très réactives (sulfures et carbonates ; Lucey *et al.*, 2004).

Même si les mécanismes conduisant à la remobilisation du plutonium à partir des sédiments déposés sont encore mal connus, ce processus est maintenant prouvé en Mer d'Irlande (Hunt and Kershaw, 1990). Dans le sédiment et dans les eaux interstitielles, le plutonium est à l'état IV. Un changement des équilibres est observé qui se traduit par une diminution du coefficient de partition de 10^6 dans l'eau libre à 10^4 dans l'eau interstitielle à 25 cm sous l'interface eau-sédiment (Sholkovitz and Mann, 1984). Les flux diffusifs induits ne suffisent cependant pas, à eux seuls, à modifier significativement le stock de plutonium sédimentaire.

VÉGÉTAUX

Les gammes de concentration mesurées dans les algues figurent en fin de chapitre.

Les facteurs de concentration du plutonium obtenus *in situ* pour les algues varient entre 85 et 4 000, (Fraizer et Guary, 1976 ; Germain *et al.*, 2000 ; Germain et Miramand, 1984 ; IAEA, 2004 ; Métivier *et al.*, 1996 ; GRNC, 1999).

ANIMAUX

Les gammes de concentration mesurées dans les animaux figurent en fin de chapitre.

Actuellement, les rejets les plus significatifs proviennent des usines de retraitement du combustible usé, et les efforts des exploitants se matérialisent par une diminution des quantités rejetées, induisant des teneurs dans le milieu naturel en diminution, et inférieures aux concentrations d'actinides d'origine naturelle.

En Manche, depuis le début des années 1980 les teneurs en plutonium ont diminué d'un facteur 5 à 10 chez les espèces du fait de la diminution des quantités rejetées par l'usine de la Hague. Le long des côtes françaises de la Manche, les concentrations sont actuellement inférieures à 1 Bq.kg $^{-1}$ sec (0,2 Bq.kg $^{-1}$ frais) chez des espèces indicatrices, mollusques patelles et moules. Dans d'autres zones de la Manche, les niveaux chez les espèces sont voisins ou inférieurs à ceux indiqués ci-dessus. Les activités sont peu différentes dans d'autres régions océaniques.

En règle générale, les potentialités de fixation diminuent des organismes inférieurs (plancton, algues) jusqu'aux organismes supérieurs (poissons). Les facteurs de concentration du plutonium obtenus *in situ* sont dans les gammes suivantes pour les organismes entiers : 40 à 2 500 pour les crustacés, 20 à 8 000 pour les mollusques, et inférieur à 1 à 600 pour les poissons (Fraizer et Guary, 1976 ; Germain *et al.*, 2000 ; IAEA, 2004 ; Métivier *et al.*, 1996 ; Ryan, 2002 ; Skwarzec *et al.*, 2001).

Les activités en plutonium sont plus faibles chez les poissons que chez les autres espèces marines. Le plutonium mesuré dans des poissons collectés dans la baie de Gdansk, dans la partie sud de la mer Baltique, provient en

partie de l'accident de Tchernobyl. Cette conclusion se base sur les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les organes et tissus (ce rapport allant jusqu'à 0,6 pour les organes de certaines espèces). Ces observations suggèrent la possibilité d'une « remobilisation » du plutonium à partir des sédiments. Pour les organismes entiers, les concentrations enregistrées sont comprises entre 0,33 et 2,35 Bq.kg⁻¹ frais, et les rapports isotopiques sont compris entre 0,18 et 0,39 (Skwarzec *et al.*, 2001).

Les rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ sont de l'ordre de 0,20 chez les espèces dans l'environnement de Sellafield (Food Standards Agency, 2001). Le rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ a augmenté dans les rejets de 0,10 dans les années soixante jusqu'à plus de 2 dans les années récentes. Les valeurs de ce rapport n'ont pas augmenté dans les mêmes proportions chez les espèces animales, passant de l'ordre de 0,15 dans les années 1970, et en 1996 à 0,5-0,6 pour les patelles. En effet, les rejets de l'usine de la Hague ayant diminué, la part relative des autres sources est plus grande. Ces autres sources correspondent, d'une part, à des arrivées d'eaux atlantiques marquées par les retombées, et d'autre part, à des origines qui devront être précisées, tout spécialement celles correspondant à l'hypothèse de plutonium désorbé des sédiments marqués par des rejets anciens (Germain *et al.*, 2000).

À partir de l'eau de mer, ce sont les surfaces externes qui fixent le plus les radioéléments, alors que par la voie trophique, les systèmes digestifs des animaux accumulent les plus forts pourcentages de radionucléides (Bjerregaard *et al.*, 1985 ; Guary *et al.*, 1982). Les transferts directs de transuraniens entre sédiments et espèces vivantes sont faibles (Miramand *et al.*, 1982 ; Germain et Miramand, 1984 ; Ryan, 2002).

Les taux d'assimilation (fraction de radioactivité ingérée retenue par l'organisme) après un transfert trophique sont variables selon les espèces. Par exemple, chez un animal brouteur (oursin), ils sont inférieurs à 10 %, chez un animal filtreur (moule), ils sont de l'ordre de 1 à 15 % (Bjerregaard *et al.*, 1985), chez un astéride (animal carnivore) ils sont d'environ 90 %, chez les crustacés décapodes, ils sont compris entre 10 et 40 % (Guary, 1980). Les cinétiques d'élimination du plutonium et des autres transuraniens indiquent que deux ou trois compartiments biologiques sont impliqués dans leur rétention (Fowler *et al.*, 1975 ; Guary, 1980 ; Bjerregaard *et al.*, 1985 ; Tocquet, 1995).

La distribution du plutonium n'est pas uniforme entre les différents organes et tissus d'un individu. Ainsi, chez les mollusques et crustacés, les coquilles, les exosquelettes, les glandes digestives, les branchies sont les organes qui accumulent le plus ces isotopes. L'hémolymphé est probablement responsable des transferts entre les organes. Le rôle des différents types cellulaires et des organites cellulaires dans l'incorporation, la rétention et l'élimination des transuraniens au sein d'organes cibles ont été étudiés chez certains organismes. Par exemple dans la glande digestive du tourteau *Cancer pagurus*, crustacé décapode, le plutonium ainsi que l'américium sont associés aux concrétions minérales (granules de phosphate de calcium (Guary et Négrel, 1981). Chez le homard *Homarus gammarus*, l'hépatopancréas (glande digestive) est le site principal de l'incorporation du plutonium après un marquage expérimental, le cytosol étant le compartiment subcellulaire où le pourcentage le plus important de plutonium est retrouvé (Tocquet, 1995). Le lien entre plutonium et ferritine a été mis en évidence, et il expliquerait, au moins en partie, la distribution et la rétention à long terme dans l'organisme du fait que le plutonium accompagnerait le fer lorsque ce dernier est distribué dans l'organisme.

Concentrations en plutonium mesurées dans les organismes marins

Espèces	Lieu de prélèvement	Pu (Bq.kg ⁻¹ frais)	Réf.
Algues rouges <i>Porphyra sp.</i>	Mer d'Irlande (proximité de l'usine de Sellafield)	^{239,240} Pu : < 10 ²³⁸ Pu : < 2 ²⁴¹ Pu : 18 - 27	1
Algues brunes <i>Fucus serratus</i> (espèce indicatrice)	Manche (Nord Cotentin, proximité de l'usine COGEMA de la Hague)	Pu : 0,2	2
Poissons	Zones contaminées	^{239,240} Pu : 1 à 100	3
Poissons ^a	Mer d'Irlande (proximité de l'usine de Sellafield)	^{239,240} Pu : 0,0012 - 0,2 ²³⁸ Pu : < 0,030	1
Mollusques ^a	Mer d'Irlande (proximité de l'usine de Sellafield)	^{239,240} Pu : < 10, en général (< 1 à une certaine distance de l'émissaire) ²³⁸ Pu : maximum 3 ²⁴¹ Pu : < 100	1
Mollusques : bigorneaux ^a	Mer d'Irlande (proximité de l'usine de Sellafield)	²⁴¹ Pu : maximum 170	1
Mollusques : patelles, moules	Manche	Pu : < 0,2	2
Crustacés ^a	Mer d'Irlande (proximité de l'usine de Sellafield)	^{239,240} Pu : maximum 1 ²³⁸ Pu : < 0,1	1

¹ Food Standards Agency, 2001 ; Mitchell *et al.*, 1996 ; ² Germain *et al.*, 2000 ; ³ Skwarzec *et al.*, 2001.

^a Parties comestibles.

EN RÉSUMÉ...

Le plutonium est l'un des radioéléments les plus étudiés dans l'environnement et ce, depuis des décennies. Cependant, les travaux les plus anciens sont plutôt des descriptions empiriques de sa présence dans l'environnement. Depuis quelques années, des recherches plus spécifiques s'attachent à davantage expliquer les mécanismes qui gouvernent la mobilité du plutonium, en particulier son comportement biogéochimique. Cependant, les données explicatives relatives à la biosphère restent moins nombreuses que celles concernant la géosphère.

La rétention du plutonium — globalement forte — dépend du type de sol ; elle augmente notamment avec le pH du sol. Les phénomènes qui aboutissent à l'immobilisation du plutonium sont dominants : complexation par les ligands organiques insolubles et les carbonates, sorption sur les minéraux argileux, agglomération de colloïdes. Cependant, quelques processus sont susceptibles de favoriser la mobilité du plutonium. Outre l'oxydation éventuelle du Pu(IV) en Pu(V), dont la mobilité serait supérieure, la migration peut être accrue par complexation avec les composés organiques solubles mobiles. Les molécules susceptibles d'intervenir sont les acides fulviques et les molécules organiques de faible taille, notamment celles issues du métabolisme microbien, en particulier les sidérophores bactériens et, enfin, les produits de biodégradation de la matière organique. Un processus, dont l'importance semble se confirmer est celui de la migration du plutonium insoluble associé à des colloïdes, notamment à ceux d'origine microbienne. Les facteurs de transfert racinaire sont relativement bien connus, mais la dispersion des valeurs atteint plusieurs ordres de grandeur ; ils augmentent lorsque le pH du sol diminue, tout en restant faibles. Le transfert foliaire n'a quasiment pas été étudié, de même que le transfert aux produits d'origine animale et aux produits agricoles transformés. Ces transferts dans les chaînes alimentaires sont considérés comme relativement faibles.

En milieu aquatique continental, comme en milieu terrestre, le plutonium apparaît majoritairement fixé sur les phases solides, notamment du fait de la formation de colloïdes, dans lesquelles les formes Pu(III) et Pu(IV) sont dominantes. Toutefois la distinction entre les formes ioniques, colloïdales, pseudo-colloïdales et particulières est délicate. Pour tous les organismes, les valeurs des facteurs de concentration sont dispersées sur plusieurs ordres de grandeur, la détermination d'une valeur représentative apparaissant souvent difficile. Le niveau dans la chaîne alimentaire joue un rôle important dans l'accumulation du plutonium par les poissons, où il se fixe préférentiellement dans le squelette et le foie. De manière générale, le transfert par la voie alimentaire est méconnu.

En milieu marin, le plutonium est présent essentiellement à l'état d'oxydation V dans l'eau de mer et à l'état d'oxydation IV dans les sédiments. La présence de matière organique dissoute influence fortement la spéciation du plutonium dissous. C'est notamment le cas dans les estuaires où il présente un comportement non conservatif.

Le plutonium montre une très forte affinité pour les particules sédimentaires ; les sédiments fins présentent les activités en plutonium les plus élevées. Après enfouissement dans la colonne sédimentaire, le plutonium peut s'associer à des phases sédimentaires néoformées et réactives, telles que les carbonates et les sulfures ; les coefficients de distribution peuvent alors diminuer d'un facteur 100 par rapport à ceux observés dans l'eau libre. Dans ces conditions, les sédiments peuvent agir comme des sources secondaires de plutonium vers la colonne d'eau.

Les teneurs dans le milieu naturel sont en diminution et sont inférieures aux concentrations d'actinides d'origine naturelle. Les facteurs de concentration ont été déterminés dans des espèces algales et animales et ils montrent une large dispersion. En règle générale, les potentialités de fixation diminuent des organismes inférieurs (plancton, algues) jusqu'aux organismes supérieurs (poissons). Certains organes présentent des potentialités de fixation plus élevées que d'autres, tels les exosquelettes, les glandes digestives, les branchies. Au niveau cellulaire, certaines études montrent l'importance du cytosol dans la distribution du plutonium, et un lien avec la ferritine.

PARAMÈTRES RADIOÉCOLOGIQUES USUELLES : MILIEU TERRESTRE

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

Sol sableux et/ou acide ¹	$5,4 \times 10^2$ ($1,8 \times 10^1$ – $1,6 \times 10^4$)
Sol argileux ¹	$4,9 \times 10^3$ ($7,4 \times 10^1$ – $3,3 \times 10^5$)
Sol limoneux ou texture moyenne ¹	$1,2 \times 10^3$ ($1,1 \times 10^2$ – $1,3 \times 10^4$)
Sol organique (> 30 % de M.O.) ¹	$1,8 \times 10^3$ ($1,0 \times 10^0$ – $3,3 \times 10^5$)
Sols agricoles ^{2, a}	$2,2 \times 10^3$ ($3,0 \times 10^2$ – $2,7 \times 10^4$)

(¹ IAEA, 1994 ; ² Roussel-Debet, 2003)

^a Kd = $246 \times S^{-1,77}$ en fonction de la proportion de sables (S, exprimé en g.g⁻¹ sol sec).

Facteur de transfert foliaire (Bq.kg⁻¹ de végétal sec par Bq.m⁻²)

Aucune valeur

Facteur de transfert racinaire (Bq.kg⁻¹ de végétal sec par Bq.kg⁻¹ de sol sec)

Céréales (grain)	$8,6 \times 10^{-6}$
Légumes feuilles (salade, choux, épinard)	$7,3 \times 10^{-5}$
Légumes fruits (pois, haricots)	$4,9 \times 10^{-4}$
Légumes racines (betterave, radis)	$5,2 \times 10^{-3}$
Tubercules (pomme de terre)	$1,5 \times 10^{-4}$
Fourrage (légumineuse)	$8,0 \times 10^{-4}$
Fourrage (maïs)	$7,5 \times 10^{-5}$
Herbe	$3,4 \times 10^{-4}$
Fruits :	
• pommes	$1,3 \times 10^{-6} – 3,0 \times 10^{-2}$
• myrtilles, fraises	$6,4 \times 10^{-5} – 8,3 \times 10^{-4}$

(IAEA, 1994 ; Carini, 2000)

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

Lait de vache	6×10^{-5}
Lait de brebis ou de chèvre	4×10^{-4}
Viande de bœuf	6×10^{-5}
Viande de mouton	7×10^{-4}
Viande de porc	3×10^{-4}
Volaille	2×10^{-4}
Œufs	7×10^{-3}

(Müller et Pröhl, 1993 ; Roussel-Debet et Beaugelin-Seiller, 2000)

Facteur de transfert par transformation alimentaire ($Bq.kg^{-1}$ transformé par $Bq.kg^{-1}$ brut)

Blé tendre → farine	2×10^{-1}
Riz long → riz blanchi	8×10^{-1}

(Müller et Pröhl, 1993 ; Roussel-Debet et Réal, 1995)

PARAMÈTRES RADIOÉCOLOGIQUES USUELLES : EAUX DOUCES

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

Conditions oxydantes	1×10^5
----------------------	-----------------

(IAEA, 1994)

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

Algues	$1,8 \times 10^4$
Plantes supérieures en général	
• immergées	1×10^5
• émergées	$3,6 \times 10^4$

(Coughtrey *et al.*, 1984)

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

Crustacés	$1,3 \times 10^4$
Mollusques	$1,5 \times 10^6$
Poissons	
• organisme entier	$1,5 \times 10^2$
• partie consommable	$3,0 \times 10^1$
Carassin (<i>Carassus auratus</i>)	$2,0 \times 10^6$
Alose (<i>Alosa pseudoharengus</i>)	$1,2 \times 10^2$
Perche (<i>Perca species</i>)	$1,8 \times 10^1$
Éperlan (<i>Osmerus eperlanus</i>)	5×10^1
Truite, saumon	$4,0 \times 10^0$

(Coughtrey *et al.*, 1984 ; IAEA, 1994)

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

Poisson adulte bluegill (<i>Lepomis macrochirus</i>)	→ poisson adulte blackbass (<i>Micropterus salmoides</i>)	$3,6 \times 10^{-2}$
--	---	----------------------

(Emery *et al.*, 1981)

PARAMÈTRES RADIOÉCOLOGIQUES USUELS : MILIEU MARIN

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

Sédiments côtiers ¹	1×10^4
Sédiments océaniques et côtiers ²	1×10^5

(¹ GRNC, 1999 ; ² IAEA, 2004)

Les facteurs de concentration ont été calculés à partir de résultats de mesures obtenus *in situ*.

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

Algues ^{1, 5, 6}	$5 \times 10^2 - 4 \times 10^3$
Algues vertes ³	$1,1 \times 10^2 - 1,6 \times 10^2$
Algues brunes ^{3, 4} <i>Fucus serratus</i> ²	$8,5 \times 10^1 - 2,0 \times 10^3$ 4×10^3
Algues rouges ³	$1,0 \times 10^2 - 1,2 \times 10^3$
Phytoplancton ⁵	2×10^5

(¹ GRNC, 1999 ; ² Germain *et al.*, 2000 ; ³ Fraizer et Guary, 1976 ; ⁴ Germain et Miramand, 1984 ; ⁵ IAEA, 2004 ;

⁶ Métivier *et al.*, 1996)

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

Mollusques ^{1, 7, 9}	$4,0 \times 10^1 - 8,3 \times 10^3$
Mollusques (sauf céphalopodes) ^{1, 2, 5}	3×10^3
Mollusques ¹¹	
• organisme entier	$6,0 \times 10^1 - 1,6 \times 10^3$
• chair	$2,0 \times 10^1 - 7,0 \times 10^1$
• coquille	$8,0 \times 10^1 - 2,3 \times 10^3$
Mollusques, bivalves ¹⁰	$3,2 \times 10^3$
Mollusque, <i>Mytilus edulis</i> (moule) ^{4, 8}	
• chair	$1,3 \times 10^3 - 1,4 \times 10^3$
• coquille	$1,6 \times 10^3$
Mollusques gastéropodes ³	
• organisme entier	$4,8 \times 10^1 - 2,1 \times 10^2$
• chair	$5,5 \times 10^1 - 3,3 \times 10^2$
• coquille	$4,3 \times 10^1 - 1,8 \times 10^2$
Mollusques, <i>Littorina littorea</i> (bigorneau) ^{6, 8}	$1,3 \times 10^2 - 5,7 \times 10^3$
Mollusques céphalopodes ⁵	$5,0 \times 10^1$
Crustacés ^{1, 3, 5, 7, 9, 10}	$4,0 \times 10^1 - 2,7 \times 10^3$
Crustacés <i>Cancer pagurus</i> (tourteau) ⁶	$1,0 \times 10^1 - 3,3 \times 10^2$
Poissons ^{1, 3, 5, 9, 12}	$1,0 \times 10^0 - 1,0 \times 10^2$
Poissons ¹⁰	
• organisme entier	$1,0 \times 10^2 - 6,5 \times 10^2$
• organes et tissus	$5,0 \times 10^1 - 2,0 \times 10^4$
Poissons, <i>Pleuronectes platessa</i> (plie) ⁶	$2,0 \times 10^{-1} - 4,0 \times 10^0$
Annélides ⁷	$1,0 \times 10^2 - 4,1 \times 10^3$
Éponges ⁷	$1,4 \times 10^3 - 2,1 \times 10^3$
Échinodermes ⁷	$4,5 \times 10^2 - 2,8 \times 10^3$
Urochordés, Ascidies ⁷	$7,9 \times 10^2$
Cnidaires ⁷	$1,7 \times 10^2$
Zooplancton ⁵	$4,0 \times 10^3$
Mammifères marins (foie) ⁵	$3,0 \times 10^0 - 8,0 \times 10^0$

¹ GRNC, 1999 ; ² Germain *et al.*, 2000 ; ³ Fraizer et Guary, 1976 ; ⁴ Germain et Miramand, 1984 ; ⁵ IAEA, 2004 ;

⁶ Remotrans, 2004 ; ⁷ Ryan, 2002 ; ⁸ McDonald *et al.*, 1993 ; ⁹ Métivier *et al.*, 1996 ; ¹⁰ Skwarzec *et al.*, 2001 ;

¹¹ Guary et Fraizer, 1977-a ; ¹² Guary et Fraizer, 1977- b)

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

Poisson → poisson	$1,1 \times 10^0 - 7,1 \times 10^0$
Flet → zoobenthos	$9,0 \times 10^{-2}$

(Skwarzec *et al.*, 2001)

Facteur de transfert sédiment-espèce (Bq.kg⁻¹ frais d'espèce par Bq.kg⁻¹ frais de sédiment)

Mollusques ¹	$4,0 \times 10^{-2} - 1,7 \times 10^{-1}$
Annélides ^{1, 2}	$2,0 \times 10^{-2} - 4,5 \times 10^{-1}$

(¹ Germain et Miramand, 1984 ; ² Guary et Fraizer, 1977-b)

BIBLIOGRAPHIE

- Aarkrog A (2003). Input of anthropogenic radionuclides into the World Ocean. *Deep-Sea Res pt II*, 50: 2597-2606.
- Agarande M, Benzoubir S, Neiva-Marques AM et Bouisset P (2004). Sector field inductively coupled plasma mass spectrometry, another tool for plutonium isotopes and plutonium isotope ratios determination in environmental matrices. *J Env Radioactiv*, 72(1-2): 169-176.
- Adriano DC, McLeod KW et Giravolo TC (1986). Long term availability of Cm and Pu to crop plants. *Health Phys*, 50: 647-651.
- AEN-OCDE (2002). *Tchernobyl. Évaluation de l'impact radiologique et sanitaire. Mise à jour 2002 de "Tchernobyl : Dix ans déjà"*. Rapport NEA 3509. Agence pour l'énergie nucléaire, Organisation de coopération et de développement économiques. Les éditions de l'OCDE, Paris, 35-37.
- Ansoborlo E MV, Doizi D, Moisy P, Berard P, Menetrier F, Février L, Reiller P, Guetat P, Roussel-Debet S, Beaugelin-Seiller K et Gilbin R (2003). *La spéciation du plutonium dans le domaine de la toxicologie nucléaire : milieux environnementaux et biologiques*. CEA-DEN. GT 32 SPECIATION, Note Technique DRCP/CETAMA/2003/09.
- Bjerregaard P., Topçuoglu S., Fisher N.S., Fowler S.W. (1985) Biokinetics of americium and plutonium in the mussel *Mytilus edulis*. *Mar Ecol Prog Ser*, 21: 99-111.
- Bourlat Y, Millis-Lacroix JC, Le Petit G et Bourguignon J (1996). ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs and ²³⁹⁺²⁴⁰Pu in world ocean water samples collected from 1992 to 1994. In: Guégéniat P, Germain P et Métivier H. *Radionuclides in the oceans. Inputs and Inventories*, Les Editions de Physique, Les Ulis, 75-93.
- Boust D. (1999). Distribution and inventories of some artificial and naturally occurring radionuclides in medium to coarse-grained sediments of the Channel. *Cont Shelf Res*, 19: 1959-1975.
- Boust D, Mitchell PI, Garcia K, Condren O, Leon Vintro L et Leclerc G (1996). A comparative study of the speciation and behaviour of plutonium in the marine environment of two reprocessing plants. *Radiochim Acta*, 74: 203-210.
- Bradley J, Hernlem BJ, Vane LM et Sayles GD (1999). The application of siderophores for metal recovery and waste remediation: examination of correlations for prediction of metal affinities. *Water Res*, 33(4): 951-960.
- Brainard JR, Strietelmeier BA et Smith PH (1992). Actinide binding and solubilization by microbial siderophores. *Radiochim Acta*, 58-59(2): 357-363.
- Bundt M, Albrecht A, Froidevaux P, Blaser P et Flühler H (2000). Impact of preferential flow on radionuclide distribution in soil. *Environ Sci and Technol*, 34(18):3895-3899.
- Carini F (2000). Radionuclide transfer from soil to fruit. *J Environ Radioactiv*, 52: 237-279.
- Carlton WH, Murphy CE et Evans AG (1996). Plutonium in the Savannah River site environment. *Health Phys*, 71 : 290-299.
- Carlsen L (1989). *The role of organics on the migration of radionuclides in the geosphere*. EUR 12024. Commission of the European Communities, Brussels.
- Cataldo DA, Garland TR et Wildung RE (1981). Foliar retention and leachability of submicron plutonium and americium particles. *J Environ Qual*, 10(1): 31-37.
- Copplestone D, Johnson MS, Jones SR, Toal ME et Jackson D (1999). Radionuclide behaviour and transport in a coniferous woodland ecosystem: vegetation, invertebrates and wood mice, *Apodemus sylvaticus*. *Sci Tot Environ*, 239(1-3): 95-109.
- Choppin GR et Kobashi A (1990). Distribution of Pu(V) and Pu(VI) in seawater. *Mar Chem*, 30: 241-247.
- Choppin GR et Morgenstern MA (2001). Distribution and movement of environmental plutonium. In: Kudo A et Baxter MS. *Plutonium in the environment*. Vol 1, Elsevier, Osaka, Japan, 91-105.
- Coughtrey PJ, Jackson D, Jones CH et Thorne MC (1984). Plutonium. In: Balkema AA, *Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems. A critical review of data*. Vol 4. Rotterdam, 1-35.
- Despres A (1995). Les sources de plutonium dans l'environnement. *Revue Générale Nucléaire*, 1: 24-29.
- Druteikiene R, Luksiene B et Holm E (1999). Migration of Pu-239 in soluble and insoluble forms in soil. *J Radioanal Nuc Chem*, 242: 731-737.
- Duffa C (2001). *Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône*. Thèse de doctorat. Géosciences de l'environnement, Université Aix-Marseille III.
- Emery RM, Klopfer DC, Baker DA et Soldat JK (1981). Potential radiation dose from eating fish exposed to actinide contamination. *Health Phys*, 40: 493-510.
- Eyrolles F et Charmasson S (2004). Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (<450 nm) of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea). *J Environ Radioactiv*, In press.
- Food Standards Agency - Scottish Environment Protection Agency (2001). *Radioactivity in food and the environment*, 2000. RIFE-6.
- Fraizer A et Guary JC (1976). Recherche d'indicateurs biologiques appropriés au contrôle de la contamination du littoral par le plutonium. In: *Transuranium nuclides in the environment*. IAEA, Vienne. IAEA-SM-199/18, 679-689.

- Francis AJ (2001). Microbial transformations of plutonium and implication for its mobility. In: Kudo A et Baxter MS. *Plutonium in the environment*. Vol 1, Elsevier, Osaka, Japan, 201-220.
- Fjeld RA, Serkiz SM, McGinnis PL, Elci A et Kaplan DI (2003). Evaluation of a conceptual model for the subsurface transport of plutonium involving surface mediated reduction of Pu(V) to Pu(IV). *J Cont Hydro*, 67(1-4): 79-94.
- Fowler SW, Heyraud M, Beasley TM (1975). Experimental studies on plutonium kinetics in marine biota. In: *Impacts of Nuclear Releases into the aquatic Environment*. IAEA, Vienne. IAEA-SM-198/23, 157-177.
- Frissel M J et Kosler J (1989). *Soil to plant transfer factors of radionuclides. Expected values and uncertainties. A summary of available data*. Vth Report of the Workgroup on soil to plant transfer factors. International Union of Radioecologists. Report of the working group meeting at Eg-ham, UK, 14-16 april 1987, 2-23.
- Froidevaux P, Geering J, Pillonel L, Bosset J et Valley JF (2004). ⁹⁰Sr, ²³⁸U, ²³⁴U, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K and ^{239/240}Pu in Emmental type cheese produced in different regions of Western Europe. *J Environ Radioactiv*, In press.
- Fujikawa Y, Zheng J, Cayer I, Sugahara M, Takigami H et Kudo A (1999). Strong association of fallout plutonium with humic and fulvic acid as compared to uranium and ¹³⁷Cs in Nishiyama soils from Nagasaki, Japan. *J Radioanal Nuc Chem*, 1: 69-74.
- Garcia K (1997). *Distribution et comportement du plutonium dans les eaux de la Manche et de l'estuaire de la Seine*. Thèse chimie, Univ. Paris Sud – Orsay, 307 p.
- Garcia K, Boust D, Moulin V, Douville E, Fourest B et Guillaumont R (1996). Multiparametric investigation of the reactions of plutonium under estuarine conditions. *Radiochim. Acta*, 74: 165-170.
- Germain P et Miramand P (1984). Distribution and behaviour of transuranic elements in the physical and biological compartment of the Channel French shore. In: Sieghahn K et Karlsson E. *Proceedings of the second seminar on alpha-particle spectrometry and low-level measurement, May 10-13, 1983, Harwell, Nuclear Instruments and Methods in Physic Rersearch*, 223 : 502-509. North-Holland, Amsterdam.
- Germain P, Leclerc G, Le Cavelier 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.
- Grauby A, Colle C et Morello M (1986). Cycle des actinides dans l'environnement terrestre et dulçaquicole. *J less-common met*, 122: 499-514.
- Green N, Johnson D et Wilkins BT (1996). Factors affecting the transfer of radionuclides to sheep grazing on pastures reclaimed from the sea. *J Environ Radioactiv*, 30(2): 173-183.
- Grenaut C, Germain P et Miramand P (1983). *Mesures du plutonium, de l'americium et du curium dans le milieu marin au Laboratoire de Radioécologie Marine*. Note CEA –N-2325.
- GRNC (1999). *Groupe radioécologie nord Cotentin. Rapport final* (disponible à l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire ainsi que sur internet : irsn.org/nucleaire.htm).
- Guary JC (1980). *Recherches sur les transferts et la fixation du plutonium, de l'americium et du neptunium dans le milieu marin*. Thèse de doctorat ès Sciences Naturelles, Université d'Aix Marseille II, 303 p.
- Guary JC et Fraizer A (1977-a). Etude comparée des teneurs en plutonium chez divers mollusques de quelques sites littoraux français. *Mar Biology*, 41: 263-267.
- Guary JC et Fraizer A (1977-b). Influence of trophic level and calcification on the uptake of plutonium observed, *in situ*, in marine organisms. *Health Phys*, 32: 21-28.
- Guary J.C., Negrel R. (1981) Calcium phosphate granules: a trap for transuranics and iron in crab hepatopancreas. *Comp Biochem. Phys A*, 68: 423-427.
- Guary JC, Fowler SC et Beasley TM (1982). Routes of plutonium uptake and their relation to biomagnification in starfish. *Mar Pollut Bul*, 13: 99-103.
- Guillaumont A et Adloff JP (1992). Behaviour of Environmental Plutonium at very low Concentrations. *Radiochim Act*, 58/59: 53-60.
- Haschke JM et Oversby VM (2002). Plutonium chemistry: a synthesis of experimental data and a quantitative model for plutonium oxide solubility. *J Nuclear Mater*, 305(2-3): 187-201.
- Henner P et Colle C (2003) Programme expérimental RADEMIC-CT4. *Transfert par voie foliaire du plutonium 239 au haricot (Phaseolus vulgaris)*. IRSN, Rapport DEI-SECRI n° 03-08, 33 p.
- Hersman LE, Palmer PD et Hobart DE (1993). The role of siderophores in the transport of radionuclides. Yucca Mountain Project. In: Interrante CG et Pabalan RT. *16th Materials Research Society fall meeting. Boston, MA (US)*, 30 Nov - 5 Dec 1992. *Scientific basis for nuclear waste management XVI*, Materials Research Society, Pittsburgh, PA (US), 765-770.
- Hoffman DC, Romanovski VV et Veeck AC (1997). Evaluation and testing of sequestering agents for the removal of actinides from waste streams. In: Gephart JM. *PNNL-SA-28461-Rev.1. Proceedings of the efficient separations and processing crosscutting program 1997 technical exchange meeting*. Science, Inc., Anaheim, United States, 2.21-2.24.
- Holm E, Aarkrog A, Ballestra S et Lopez JJ (1988). Fallout deposition of actinides in Monaco and Denmark following the Chernobyl accident. *IV^o Symposium international de*

radioécologie de Cadarache, Impact des accidents d'origine nucléaire sur l'environnement, 14-18 Mars 1988, A22-A36.

- Holm E, Roos P, Persson RBR, Bojanovski R, Aarkrog A, Nielsen SP et Livingston HD (1991). Radiocaesium and plutonium in Atlantic surface waters from 73°N to 72°S. In: Kershaw PJ et Woodhead D. *Radionuclides in the study of marine processes*. Norwich September 10-13, 1991. Elsevier, London, 3-11.
- Hunt G J et Kershaw PJ (1990). Remobilisation of artificial radionuclides from the sediment of the Irish Sea. *J Radiol Prot*, 10: 147-151.
- Hursthouse AS et Livens FR (1993). Evidence for the remobilisation of transuranic elements in the terrestrial environment. *Environ Geochem Health*, 15(2-3): 163-171.
- IAEA (1994). *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments*. Technical reports series 364. IAEA, Vienne.
- IAEA (2004). *Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the Marine environment*. Technical reports series no. 422. IAEA, Vienne.
- Kashparov VA, Lundin SM, Zvarych SI, Yoshchenko VI, Levchuk SE, Khomutinin YV, Maloshtan IM et Protsak VP (2003). Territory contamination with the radionuclides representing the fuel component of Chernobyl fallout. *Sci Tot Environ*, 317(1-3): 105-119.
- Keith-Roach MJ, Day JP, Fifield LK, Bryan ND et Livens FR (2000). Seasonal variation in interstitial water transuranium element concentration. *Environ Sci Technol*, 34: 4273-4277.
- Kersting AB, Efurd DW, Finnegan DL, Rokop DJ, Smith DK et Thompson JL (2000). Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site. *Nature*, 6714: 56-58.
- Ketterer ME, Hafer KM et Mietelski JW (2004). Resolving Chernobyl vs. global fallout contributions in soils from Poland using Plutonium atom ratios measured by inductively coupled plasma mass spectrometry. *J Environ Radioactiv*, In Press.
- Komosa A (1999). Migration of plutonium isotopes in forest soil profiles in Lublin region (Eastern Poland). *J Radioanal Nuc Chem*, 240: 19-24.
- Krivolutski DA, Kozhevnikova TL et Martyushov VZ (1992). Effects of transuranic (plutonium-239, neptunium-239, americium-241) elements on soil fauna. *Biol Fertil Soil*, 13(2): 79-84.
- Labonne-Wall N, Moulin V et Vilarem J (1997). Retention properties of humic substances onto amorphous silica: Consequences for the sorption of cations. *Radiochim Acta*, 79(1): 37-49.
- Lee MLH et Lee CW (2000). Association of fallout-derived ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr and ^{239,240}Pu with natural organic substances in

soils. Influence of particle size, organic matter content and pH. *J Environ Radioactiv*, 47: 253-262.

- Leonard KS, Harvey BR, Woodhead RJ, Brooks T et McCubbin D (1994). Assessment of an ultra-filtration technique for the fractionation of radionuclides associated with humic material. *J Radioanal Nuc Chem*, 181(2): 309-320.
- Livens FR et Singleton DL (1991). Plutonium and americium in soil organic matter. *J Environ Radioactiv*, 13: 323-329.
- Lu N, Kung KS, Mason CFV, Triay IR, Cotter CR et Pappas AJ (1998). Removal of plutonium-239 and americium-241 from Rocky Flats soil by leaching. *Environ Sci Technol*, 32: 370-374.
- Lucey JA, Gouzy A, Boust D, Leon Vintro L, Bowden L, Finnegan PP, Kershaw PJ et Mitchell PI (2004). Geochemical fractionation of plutonium in anoxic Irish Sea sediments using an optimised sequential extraction protocol. *Appl Radiat Isotopes*, 60: 379-385.
- McDonald P, Baxter MS et Fowler SW (1993). Distribution of radionuclides in mussels, winkles and prawns. Part 1. Study of organisms under environmental conditions using conventional radio-analytical techniques. *J Environ Radioactiv*, 18: 181-202.
- McDonald P, Vives i Battle J, Bouscher A, Whittall A et Chambers N (2001). The Availability of Plutonium and Americium in Irish Sea Sediments for Re-dissolution. *Sci Tot Environ*, 267: 109-123.
- McKay WA et Pattenden NJ (1993). The behaviour of plutonium and americium in the shoreline waters of the Irish Sea: a review of Harwell studies in the 1980's. *J Environ Radioactiv*, 18(2): 92-132.
- Madic C (2000). Le comportement imprévu du plutonium. *La Recherche*, 330: 22-23.
- Mboulou MO, Hurtgen C, Hofkens K et Vandecasteele C (1998). Vertical distributions in the Kapachi Soil of the plutonium isotopes (²³⁸Pu, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Pu), of ²⁴¹Am and of ^{243,244}Cm, eight years after the Chernobyl accident. *J Environ Radioactiv*, 39(3): 231-238.
- Métayer-Piret M, Gerber GB et Foulquier L (1981). Plutonium in freshwater ecosystems: a literature review. *Eur Appl Res*, 1: 417-490.
- Métivier H, Colle C et Germain P (1996). Les actinides et l'homme dans son environnement. In: Clefs CEA. *Les recherches sur les actinides*, 31: 62-72.
- Miramand P, Germain P et Camus H (1982). Uptake of americium and plutonium from contaminated sediments by three benthic species: *Arenicola marina*, *Corophium volutator* and *Scrobicularia plana*. *Mar Ecol-Prog Ser*, 7: 59-65.
- Mitchell PI, Kershaw PJ et Leon Vintro L (1996). Radioactivity in the Irish Sea: past practices, present status and future perspectives. In: Guégueniat P, Germain P et Métivier H.

Radionuclides in the oceans. Inputs and Inventories. Les Editions de Physique, Les Ulis, 155-175.

- Mitchell PI, Vives i Battlle J, Downes AB, Condren OM, Leon Vintro Let Sanchez-Cabeza JA (1995). Recent observations on the physico-chemical speciation of plutonium in the Irish Sea and the Western Mediterranean. *Appl Radiat Isotopes*, 46(11): 1175-1190.
- Morse JW et Choppin GR (1986). Laboratory studies of plutonium in marine systems. *Mar Chem*, 10: 73-89.
- Müller H et Pröhle G (1993). ECOSYS-87: a dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents. *Health Phys*, 64: 232-252.
- Murphy CE et Tuckfield RC (1994). Transuranic element uptake and cycling in a forest over an old burial ground. *Sci Tot Environ*, 157(1-3): 115-124.
- Nelson D, Carey AE et Bowen VT (1984). Plutonium oxidation state distribution in the Pacific Ocean during 1980-1981. *Earth Planet Sc Lett*, 68: 422-430.
- Nelson DM et Lovett MB (1978). Plutonium oxidation state distribution in the Irish Sea. *Nature*, 276: 599-601.
- Neu MP, Boukhalfa H, Ruggiero CE, Lack JG, Hersman LE et Reilly SD (2003). Microbial siderophore influence on plutonium biogeochemistry. *J Inorg Biochem*, 96(1): 69.
- Nishita H (1981). Relative adsorption and plant uptake of ^{238}Pu and ^{239}Pu in soils. *Soil Sci*, 132(1): 66-70.
- Nuclides 2000 (1999). *An electronic chart of the nuclides*. Institute for Transuranium Elements, Joint research center, European commission.
- Onishi Y, Serne RJ, Arnold EM, Cowen CE, et Thompson FL (1981). Critical review: Radionuclide transport, sediment transport, and water quality mathematical modeling and radionuclide adsorption/desorption mechanisms. NUREG/CR-1322, PNL-2901, Pacific Northwest Lab., Richmond, WA.
- Orlandini K, Penrose WR et Nelson D (1986). Pu(V) as the stable form of oxidised plutonium in natural waters. *Mar Chem*, 18: 49-57.
- Page SD (1999). *Understanding variation in partition coefficient, Kd, values*. EPA 402-R-99-004A, Environmental Protection Agency, Office of Radiation and Indoor Air Office of Solid Waste and Emergency Response, US Environmental Protection Agency, Washington, DC (US), 5.34-5.44.
- Remotrans (2004). *Processes regulating remobilization, bioavailability and translocation of radionuclides in marine sediments*. Deliverable 4.1: Concentration Factors. Union Européenne, contract N°: FIGE-CT-2000-00085, project N°: FIS5-1999-00279 Remotrans 000509.
- Romney EM, Wallace A, Schulz RK, Kinnear J et Wood RA (1981). Plant uptake of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm from soils representing major food production areas of the United States. *Soil Sci*, 132(1): 40-59.
- Rosner G, Hoetzl H et Winkler R (1997). Long-Term Behaviour of Plutonium in Air and Deposition and the Role of Resuspension in a Semi-rural Environment in Germany. *Sci Tot Environ*, 196(3): 255-261.
- Runde W, Efurd D, Neu MP, Reilly SD, VanPelt C et Conradson SD (2000). Plutonium in the Environment: Speciation, Solubility, and the Relevance of Pu(VI). *AIP conference proceedings Plutonium Futures: The Science*. Topical Conference on Plutonium and Actinides: 532, 272-273.
- Roussel-Debet S et Beaugelin-Seiller K (2000). *Paramètres par défaut pour la prise en compte des transuraniens dans ASTRAL*. Rapport IPSN/DPRE/SERLAB/00-08.
- Roussel-Debet S et Réal J (1995). Effet de traitements alimentaires de légumes et de céréales sur la radioactivité des produits transformés. *Radioprotection*, 30:377-390.
- Roussel-Debet S (2003). *Sorption - désorption des transuraniens dans les sols*. Rapport IRSN/DPRE/SERLAB/03-04.
- Ryan T (2002). Transuranic biokinetic parameters for marine invertebrates – a review. *Environ Int*, 28: 83-96.
- Sholkovitz ER et Mann DR (1984). The pore water chemistry of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediments of Buzzards Bay, Massachusetts. *Geochim Cosmochim Ac*, 48(5): 1107-1114.
- Skipperud L, Oughton D et Salbu B (2000). The impact of Pu speciation on distribution coefficients in Mayak soil. *Sci Tot Environ*, 257: 81-93.
- Skwarzec B, Struminska DI et Borylo A (2001) Bioaccumulation and distribution of plutonium in fish from Gdańsk Bay. *J Environ Radioactiv*, 55: 167-178.
- Skytte-Jensen B (1980). *The geochemistry of radionuclides with long half-lives. Their expected migration behaviour*. RISØ-R-430. Nov 1980. 53 p.
- Tocquet N (1995). *Biocinétiques d'un élément transuranien, le ^{238}Pu , et d'une terre rare, le ^{152}Eu , chez le homard *Homarus gammarus* (organes et niveau cellulaire) modalités des transferts (accumulation et detoxication)*. Rapport CEA-R- 5698.
- UNSCEAR (1982). *Rayonnements ionisants: sources et effets biologiques*. Nations Unies, Annexe E du rapport à l'Assemblée Générale pour l'étude des Effets des Rayonnements Ionisants, 207-240.
- Zhao P, Romanovski VV, Whisenhunt-Jr DW, Hoffman DC, Mohs TR, Xu J et Raymond KN (1999). Extraction of plutonium by chelating hydroxypyridinone and catecholamide resins. *Solvent Extr Ion Exc*, 17(5): 1327-1353.