Évolution 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

P. GERMAIN*, G. LECLERC*, S. LE CAVELIER*,
L. SOLIER*, Y. BARON**

(Manuscrit reçu le 6 février 1999, révisé le 30 août 1999, accepté le 7 novembre 1999)

RÉSUMÉ

L'étude de la distribution spatiale et de l'évolution temporelle des isotopes du plutonium (^{238}Pu , $^{239-240}\text{Pu}$) chez des espèces indicatrices (*Fucus serratus*, *Patella* sp., *Mytilus edulis*) a été réalisée le long des côtes de la Manche. Plusieurs époques ont été considérées, 1982-1983, 1990-1993 et 1996. Les concentrations des différents isotopes sont inférieures à 1 Bq kg⁻¹sec pour les années les plus récentes. Une diminution de ces concentrations depuis plusieurs années est observée et elle est associée à la diminution des quantités de plutonium rejetées par l'usine de la Hague. Des gradients de distribution des isotopes le long des côtes apparaissent pour les fucus. La différence entre les rapports isotopiques des espèces et des rejets conduit à discuter des diverses sources de radioactivité influençant les niveaux de plutonium. Enfin, les facteurs de concentration sont définis.

ABSTRACT Variation of activity levels, isotope ratios, concentration factors in space and time of plutonium in seaweed and mollusc species along the coast of the English Channel.

A study was carried out on the spatial and temporal variation of plutonium isotopes (^{238}Pu , $^{239-240}\text{Pu}$) in bioindicator species (*Fucus serratus*, *Patella* sp., *Mytilus edulis*) sampled along the coast of the English Channel. Several periods of time were considered, covering 1982-1983, 1990-1993 and the year 1996. The activity levels of the radionuclides in question were less than 1 Bq kg⁻¹dry basis. A decrease in these activities has been observed over a number of years in relation to a reduction in the amounts of plutonium released from the establishment of La Hague. Longshore gradients are apparent in the radionuclide distribution for *Fucus*. The discrepancy between the isotope ratios measured in the bioindicator species and the releases from industrial sources leads to a discussion of the various source-terms affecting plutonium activities. Then concentration factors are defined.

* Institut de protection et de sûreté nucléaire, DPRE, BP 10, 50130 Octeville, France.

** Groupe d'études atomiques, Marine nationale, BP 34, 50115 Cherbourg Naval, France.

1. Introduction

L'étude de la distribution des radionucléides émetteurs alpha dans l'environnement est importante en radioécologie et en radioprotection du fait de leur radiotoxicité et de leur longue période physique, pour bon nombre d'entre eux. Des études ont déjà été menées le long des côtes françaises de la Manche relatives à leur distribution spatio-temporelle chez des espèces indicatrices, l'eau de mer et des sédiments. Elles concernent des éléments transuraniens (Pu, Am, Cm, Np), dont les résultats ont été acquis entre 1975 et 1990 (Germain et Miramand, 1984 ; Germain et Pinte, 1990). Des études expérimentales en laboratoire ont complété ces travaux afin de préciser les voies et les modalités de transfert, en particulier les transferts eau-animaux et sédiments-animaux (Miramand *et al.*, 1982 ; Miramand et Germain, 1985 ; Germain *et al.*, 1984). En Manche, l'ensemble des isotopes du plutonium présents est dû aux rejets contrôlés de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de la Hague, auxquels s'ajoutent ceux provenant des essais atmosphériques d'armes nucléaires.

Les quantités rejetées par l'usine de retraitement des combustibles irradiés de la Hague pour l'ensemble des radionucléides, dont le plutonium, ont diminué depuis le milieu des années 1980 (Betis, 1993 ; Germain et Guéguénat, 1993 ; Després, 1995). Le rapport isotopique $^{238/239-240}\text{Pu}$ a évolué, quant à lui, d'environ 0,15 en 1975 à 2 actuellement, alors que le rapport isotopique des retombées des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère est de l'ordre de 0,03 (Holm *et al.*, 1991). Le présent travail fait le point sur la distribution spatio-temporelle des isotopes du plutonium chez quelques espèces indicatrices (algues et mollusques) le long des côtes françaises de la Manche. Il complète ainsi les données de la littérature sur ces isotopes, en particulier dans cette région, et il apporte des informations sur le comportement et la distribution de radionucléides considérés comme non conservatifs. De plus, l'ensemble des mesures réalisées en Manche permet la détermination de facteurs de concentration obtenus *in situ* et pouvant être utilisés pour les études radiologiques locales. Ce dernier point s'avère important comme le montre l'évaluation de l'impact radiologique des sources radioactives dans le Nord Cotentin, réalisée par «le groupe radioécologie Nord Cotentin», créé par le Gouvernement français en 1997 (GRNC, 1999).

2. Matériels et méthodes

Les mesures de plutonium ont été effectuées sur des échantillons prélevés dans quatre stations (Carteret, Diélette, Cherbourg, Wimereux) entre 1990 et 1993-1994, en 1996, et, pour une station (Goury), dans la période 1982-1983 (Fig. 1).

Les stations ont été choisies à partir d'études concernant la distribution de radionucléides rejetés par l'usine de la Hague chez des bioindicateurs, et des

Fig. 1. – Localisation géographique des stations de prélèvement.

Geographical location of sampling stations.

caractéristiques de dilution décrites par un modèle hydrodynamique de la Manche, lequel a permis d'identifier des masses d'eau (« tourbillons » dans le golfe normand breton et en baie de Seine), à partir de leurs trajectoires (c'est-à-dire les champs de courants résiduels lagrangiens) (Salomon *et al.*, 1991, Germain et Salomon, 1991). Ainsi, Carteret se situe près de la frontière entre deux tourbillons du golfe normand breton (tourbillons des Minquiers et de Flamanville); Diélette et Goury se trouvent en bordure et au nord d'un tourbillon (Flamanville), dans lequel sont rejetés les effluents de l'usine de retraitement de la Hague. La rade de Cherbourg, à l'est du point de rejet, est un lieu où existe une sédimentation fine. Enfin Wimereux se situe à l'est de la Manche.

Des espèces indicatrices, les algues brunes *Fucus serratus* (L.) et les mollusques gastéropodes brouteurs *Patella* sp., ont été prélevées sur l'estran de ces stations et le mollusque lamellibranche *Mytilus edulis* (L.) à Wimereux.

Les organismes ont été prélevés à la main; les grains sédimentaires, les épiphytes, l'épifaune furent éliminés avant que l'échantillon ne soit séché à 90 °C et réduit en poudre. Le poids frais des chairs de moules correspond aux parties molles plus le liquide intervalvaire. Pour des raisons de logistique, les moules n'ont pas été épurées après ramassage. L'eau de mer a été échantillonnée à partir du rivage (100 l), et filtrée immédiatement sur filtres 0,45 µm. Quelques

échantillons de suspensions ont été traités lorsque les quantités le permettaient (3 à Carteret en 1994, et 3 à Cherbourg en 1996). Après addition du traceur dans les échantillons biologiques, les suspensions et l'eau filtrée, le plutonium fut séparé et extrait par la méthode radiochimique décrite par Grenaut *et al.* (1983). Les spectrométries alpha furent réalisées en utilisant des détecteurs semi-conducteurs (type jonction passivé implanté au Si, 300 mm²) couplés à un analyseur. Les résultats sont exprimés en Bq kg⁻¹ sec ou Bq l⁻¹. L'incertitude associée aux résultats est donnée à 1 σ .

Le facteur de concentration (FC) est défini comme le rapport entre la concentration du radionucléide dans l'organisme et la concentration dans l'eau de mer ambiante. La détermination de ce facteur implique un nombre important de résultats et des valeurs moyennées sur plusieurs mois. La concentration dans l'eau peut être connue, soit par mesures *in situ*, soit par estimation à l'aide d'un modèle d'advection-diffusion.

In situ, au cours de cette étude, le nombre de mesures de concentration du plutonium dans l'eau de mer est limité. Cependant, ces dernières années, depuis 1992, les valeurs sont assez homogènes se situant essentiellement entre 10×10^{-6} et 30×10^{-6} Bq l⁻¹ du Cap de la Hague au Pas de Calais. Aussi nous avons considéré ces deux valeurs et les moyennes annuelles d'activité chez les espèces pour calculer les facteurs de concentration.

Grâce aux caractéristiques de dilution définies à partir de mesures effectuées sur des échantillons d'eau de mer, et aux prévisions du modèle de dispersion en Manche de l'IFREMER (Baillly du Bois *et al.*, 1997 ; Salomon *et al.*, 1991) les concentrations en plutonium de l'eau de mer peuvent être calculées. Il faut aussi considérer :

- la quantité de radionucléide présente du fait des retombées atmosphériques. Les eaux de l'Atlantique qui alimentent la Manche présentent des niveaux de ²³⁹⁻²⁴⁰Pu de 6×10^{-6} à 9×10^{-6} Bq l⁻¹ (Holm *et al.*, 1991 ; Bourlat *et al.*, 1996). Ainsi les FC sont calculés à partir des valeurs « théoriques » dans l'eau (fonction des quantités rejetées annuellement par l'usine de la Hague et auxquelles sont ajoutées les quantités en provenance de l'Atlantique, 9×10^{-6} Bq l⁻¹), et des moyennes annuelles des niveaux mesurés de Pu chez les espèces.
- le fait que le plutonium peut se fixer sur les particules. Aussi, trois hypothèses sont envisagées pour l'estimation de la teneur dans l'eau suite aux rejets de l'usine de la Hague (elles couvrent une large gamme) : 20 % du plutonium rejeté est soluble et considéré comme biodisponible, puis 50 % et 80 %.

TABLEAU I

Activités massiques, rapports isotopiques du plutonium des *Fucus serratus*
le long des côtes de la manche.

Activity concentrations per unit mass and plutonium isotope ratios in *Fucus serratus* sampled
along the coasts of the English Channel.

Années Lieux	$^{239-240}\text{Pu}$ $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$	$^{238/239-240}\text{Pu}$	ps/pf	nombre d'échantillons
1982-1983				
Goury	1,0 à 3,0	0,6 à 1,2	0,20	10
1990-1993				
Carteret	0,2 à 0,6	0,3 à 0,8	0,23	27
Diélette	0,2 à 1,3	0,5 à 1,4	0,21	26
Cherbourg	0,1 à 0,5	0,5 à 1,0	0,20	17
Wimereux	0,04 à 0,7	0,2 à 0,9	0,18	25
1996				
Carteret	0,2	0,4	0,22	1
Diélette	0,2	0,7	0,21	1
Cherbourg	0,1 à 0,4	0,4 à 0,7	0,20	12

ps/pf = poids sec/poids frais moyen des *Fucus serratus*.

3. Résultats

3.1. *Fucus serratus*

De 1990 à 1993 des mesures régulières ont été réalisées sur des *Fucus serratus* à Diélette, Carteret et Wimereux, et en 1992-1993 en rade de Cherbourg. Les maxima des concentrations ont été enregistrés à Diélette, niveaux inférieurs à $1,3 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$; dans les trois autres sites, les concentrations étaient inférieures à $1 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$. A l'exception de quelques valeurs proches ou supérieures à 1, les rapports isotopiques étaient inférieurs à 1, l'essentiel des valeurs étant entre 0,7 et 1,0 à Diélette et inférieures à 0,6 à Wimereux. (Tab. I, Fig. 2).

En 1996, les teneurs en $^{239-240}\text{Pu}$, à Carteret, Diélette et Cherbourg, étaient comprises entre 0,1 et $0,4 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$, les rapports isotopiques étant situés entre 0,4 et 0,7 (Tab. I).

Quelques données ont été acquises à Goury, station peu éloignée de Diélette entre juillet 1982 et mai 1983, où un suivi mensuel a été effectué. Ces données permettent une comparaison avec les données plus récentes. Des études précédentes

Fig. 2. – Activités massiques, rapports isotopiques du plutonium des *Fucus serratus* à Carteret, Diélette, Cherbourg, Wimereux en 1990-1993 et rejets de l'usine de la Hague.

Activity concentrations per unit mass and plutonium isotope ratios in *Fucus serratus* sampled from Carteret, Diélette, Cherbourg and Wimereux in 1990-1993, as well as in releases from the establishment of la Hague.

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

Fig. 2. – Suite / Continued.

Fig. 2. – Suite / Continued.

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

Fig. 2. – Suite / Continued.

TABLEAU II

Activités massiques, rapports isotopiques du plutonium des *Patella* sp.
le long des côtes de la Manche.

Activity concentrations per unit mass and plutonium isotope ratios in *Patella* sp. sampled
along the coasts of the English Channel.

Années Lieux	$^{239-240}\text{Pu}$ $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$	$^{238/239-240}\text{Pu}$	ps/pf	nombre d'échantillons
1982-1983				
Goury	0,3 à 1,5	0,4 à 0,7	0,18	10
1990-1993				
Carteret	0,04 à 0,2	0,2 à 0,6	0,18	22
Diélette	0,05 à 0,2	0,5 à 1,2	0,19	21
Cherbourg	0,08 à 0,3	0,6 à 1,2	0,21	19
Wimereux	0,05 à 0,3	0,3 à 0,6	0,24	21
1996				
Carteret	0,08	0,5	0,18	1
Diélette	0,05	0,6	0,19	1
Cherbourg	0,04 à 0,2	0,5 à 0,7	0,23	12
Wimereux	0,1	0,5	0,24	1

ps/pf = poids sec/poids frais moyen des *Patella* sp.

(Germain *et al.*, 1990) ont montré que les niveaux de radioactivité chez les espèces sont quasiment identiques entre les deux stations baignées par les eaux du tourbillon de Flamanville (Diélette et Goury). Les teneurs en $^{239-240}\text{Pu}$ ont varié de 1 à 3 $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$ et le rapport isotopique de 0,6 à 1,2 (Tab. I, Fig. 3).

3.2. Patelles et moules

Des résultats de mesures de concentration en plutonium ont été acquis dans des chairs de patelles et de moules ; les chairs participent aux échanges avec l'eau de mer et aux échanges nutritionnels, et sont consommées par l'espèce humaine.

Dans les chairs de patelles, les niveaux de $^{239-240}\text{Pu}$ se situaient, pour l'ensemble des stations, de 1990 à 1993, dans la gamme de 0,04 à 0,3 $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$ (Tab. II, Fig. 4), et les rapports isotopiques ont varié de 0,2 à 1,2.

En 1996, les teneurs en $^{239-240}\text{Pu}$ à Carteret, Diélette, Cherbourg et Wimereux étaient comprises entre 0,04 et 0,2 $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$, les rapports isotopiques étant de l'ordre de 0,5-0,6 (Tab. II). En 1982 et 1983, à Goury, les teneurs en $^{239-240}\text{Pu}$ ont varié de 0,3 à 1,5 $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$ et le rapport isotopique de 0,4 à 0,7 (Tab. II, Fig. 3). Le dosage des isotopes du plutonium a été réalisé mensuellement dans les chairs de moules à

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

Fig. 3. – Activités massiques, rapports isotopiques du plutonium des *Fucus serratus* et des *Patella* sp. à Goury en 1982-1983 et rejets de l'usine de la Hague.

Activity concentrations per unit mass and plutonium isotope ratios in *Fucus serratus* and *Patella* sp. sampled from Goury in 1982-1983, as well as releases from the establishment of la Hague.

Fig. 3. – Suite / Continued.

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

Fig. 4. – Activités massiques, rapports isotopiques du plutonium des *Patella* sp. à Carteret, Diélette, Cherbourg, Wimereux en 1990-1993 et rejets de l'usine de la Hague.

Activity concentrations per unit mass and plutonium isotope ratios in *Patella* sp. sampled from Carteret, Diélette, Cherbourg, Wimereux in 1990-1993, as well as in releases from the establishment of la Hague.

Fig. 4. – Suite / Continued.

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

Fig. 4. – Suite / Continued.

Fig. 4. – Suite / Continued.

TABLEAU III

Activités volumiques, rapports isotopiques du plutonium
dans l'eau de mer le long des côtes de la Manche.

Activity concentrations per unit volume and plutonium isotope ratios in seawater
sampled along the coasts of the English Channel.

Lieu et date	$^{239-240}\text{Pu}$ $\text{Bq l}^{-1} \times 10^{-6}$	$^{238/239-240}\text{Pu}$
Goury		
juil-82	433 ± 41	$0,62 \pm 0,09$
sep-82	278 ± 22	$0,80 \pm 0,10$
oct-82	234 ± 28	$0,73 \pm 0,13$
nov-82	252 ± 44	$0,78 \pm 0,20$
déc-82	208 ± 33	$0,75 \pm 0,18$
mars-83	363 ± 96	$0,64 \pm 0,26$
mai-83	148 ± 30	$0,47 \pm 0,16$
fév-92	10 ± 2	$1,00 \pm 0,20$
Carteret		
mars-92	20 ± 2	$1,35 \pm 0,17$
jan-94	84 ± 7	$0,55 \pm 0,07$
Wimereux		
avr-92	16 ± 1	$0,88 \pm 0,08$
sep-92	33 ± 2	$1,08 \pm 0,10$
sep-94	11 ± 1	$0,64 \pm 0,10$
Cherbourg		
juin-96	11 ± 1	$0,76 \pm 0,11$
juil-96	12 ± 1	$0,59 \pm 0,07$
aoû-96	11 ± 1	$0,55 \pm 0,07$

Wimereux en 1991, la seule des quatre stations où cette espèce est présente. Les niveaux de $^{239-240}\text{Pu}$ se situaient entre 0,04 et 0,1 $\text{Bq kg}^{-1}\text{sec}$ (poids sec/poids frais : 0,24, nombre d'échantillons : 12), le rapport isotopique évoluant entre 0,2 et 0,7.

3.3. Eau de mer

Dans l'eau de mer, les données sont nettement moins nombreuses. À Goury, de juillet 1982 à mai 1983, les teneurs mesurées (eau de mer filtrée à $0,45 \mu\text{m}$) étaient comprises pour les $^{239-240}\text{Pu}$ entre $150 \times 10^{-6} \text{ Bq l}^{-1}$ et $430 \times 10^{-6} \text{ Bq l}^{-1}$, les rapports isotopiques $^{238/239-240}\text{Pu}$ évoluant entre 0,5 et 0,8 (Tab. III). Plus récemment, entre 1992 et 1994, et en 1996, des mesures de plutonium ont été réalisées en divers points des côtes de la Manche. Les teneurs en $^{239-240}\text{Pu}$ se situaient en général entre 10×10^{-6} et

$30 \times 10^{-6} \text{ Bq l}^{-1}$, les rapports isotopiques $^{238/239-240}\text{Pu}$ étant variés, de 0,5 à 1,4. Les concentrations de $^{239-240}\text{Pu}$ dans les suspensions étaient de l'ordre de $2 \text{ Bq kg}^{-1}\text{sec}$ à Carteret en 1994, et comprises entre 0,4 et $3,7 \text{ Bq kg}^{-1}\text{sec}$ à Cherbourg en 1996.

4. Discussion

Les rejets des installations nucléaires constituent des sources ponctuelles libérées dans un milieu récepteur qui favorise une large dilution. Dans ces conditions, les isotopes du plutonium sont à l'état de traces, et ce fait détermine leur comportement dans l'environnement (Métivier *et al.*, 1995-1996). Le plutonium peut présenter plusieurs états de valence dans les eaux naturelles, Pu(V,VI) étant essentiellement associé à la fraction filtrée ($< 0,45 \mu\text{m}$), Pu(III,IV) étant essentiellement associé à la fraction particulaire ($> 0,45 \mu\text{m}$). La concentration molaire du plutonium dans la fraction filtrée ($< 0,45 \mu\text{m}$) est de l'ordre de $10^{-18\pm 1}\text{M}$ (Garcia *et al.*, 1996). Cependant, le plutonium, comme les autres éléments transuraniens, est considéré comme non conservatif au sein de la masse d'eau, puisqu'il est éliminé de celle-ci par précipitation directe ou fixation sur la matière particulaire (Condren *et al.*, 1996). Les résultats de mesurages effectués sur les suspensions ont d'ailleurs indiqué la présence de quelques Becquerel par kilogramme sec. Des études antérieures ont montré que les transferts directs de transuraniens entre sédiments et espèces vivantes étaient faibles (Miramand *et al.*, 1982 ; Germain et Miramand, 1984 ; Germain *et al.*, 1984 ; Miramand et Germain, 1985 ; Ryan, 1997). Cependant, des grains sédimentaires restant adsorbés sur les surfaces, malgré les traitements de nettoyage, peuvent intervenir sur les teneurs en radionucléides des espèces, et contribuer ainsi à la variabilité du résultat, en particulier lorsque les niveaux de radionucléides dans les espèces vivantes sont inférieurs à $1 \text{ Bq kg}^{-1}\text{sec}$, comme dans la présente étude pour l'ensemble des résultats.

4.1. Distribution spatio-temporelle du plutonium chez des algues et des mollusques le long des côtes de la Manche

Pour les fucus, les teneurs en $^{239-240}\text{Pu}$ sont en général plus élevées à Diélette et à Cherbourg, stations proches de l'émissaire de l'usine de la Hague. L'écart entre les concentrations mesurées à ces stations et celles mesurées à la station de Wimereux, à 280 km à l'est de l'émissaire, est inférieur à 3 (le rapport des concentrations des $^{239-240}\text{Pu}$ entre Diélette et Wimereux, Bq kg^{-1} à Diélette/ Bq kg^{-1} à Wimereux, est compris entre 1,4 et 2,8). Ce rapport est proche de ceux obtenus entre les deux zones pour des radionucléides solubles (rapport de 0,7 à 2,7 pour ^{125}Sb , de 0,6 à 2,0 pour ^{137}Cs , Germain *et al.*, 1990 ; 2,1 pour ^{99}Tc , Masson *et al.*, 1983 ; 1,5 pour ^{90}Sr , Aarkrog *et al.*, 1988), et il est inférieur à celui de radionucléides ayant une grande capacité à se fixer sur les particules (6 à 13 pour le ^{60}Co , Germain *et al.*, 1990). Le plutonium fait partie de cette dernière catégorie de radionucléides, et par conséquent, les écarts entre les stations distantes de près de 300 km peuvent sembler

faibles. De même, pour le Pu soluble dans l'eau de mer, il n'apparaît pas de véritable gradient décroissant des niveaux en plutonium vers l'est, et chez les patelles, il est difficile de dégager une tendance géographique. En vérité, une homogénéisation des teneurs se produit dans l'écosystème le long des côtes de la Manche lorsque celles-ci sont faibles, c'est-à-dire inférieures à $1 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$.

Entre les périodes 1982-1983 et 1992-1993, les niveaux de plutonium ont nettement diminué chez les espèces. Ainsi chez *Fucus serratus* au nord ouest Cotentin (Goury et Diélette), les niveaux ont baissé d'un facteur 5 (moyennes en $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$: 2 à Goury de juillet 1982 à mai 1983 ; 0,4 à Diélette de janvier 1992 à septembre 1993) ; chez *Patella* sp. le facteur de baisse est de l'ordre de 10 (moyennes en $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$: 0,73 à Goury de juillet 1982 à mai 1983 ; 0,07 à Diélette de janvier 1992 à septembre 1993). Cette chute est incontestablement à relier à la diminution des quantités rejetées par l'usine de retraitement de la Hague, lesquelles ont baissé d'un facteur 5-6 pour les mêmes périodes ($^{239-240}\text{Pu}$: 6300 MBq mois⁻¹ en moyenne de juillet 1982 à mai 1983, et 1100 MBq mois⁻¹ de janvier 1992 à septembre 1993).

Sur une période de temps plus courte, 1990-1991, les quantités de plutonium rejeté par cette usine ont également évolué. Ainsi, de janvier 1990 à mars 1991 la moyenne mensuelle des rejets en $^{239-240}\text{Pu}$ fut de 4200 MBq ; d'avril à décembre 1991, elle fut de 1400 MBq. Bien que les quantités rejetées soient très variables d'un mois à l'autre, une nette différence apparaît dans les gammes des quantités rejetées à partir de la fin du premier trimestre de 1991. Chez *Fucus serratus*, à Diélette, les valeurs moyennes évoluent entre les périodes prises en compte : 0,8 à 0,4 $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$; il en est de même à Wimereux, 0,4 à 0,2 $\text{Bq kg}^{-1} \text{ sec}$; par contre il n'apparaît pas d'évolution à Carteret. Chez les patelles, la décroissance des concentrations est moins homogène durant cette période 1990-1991 que celle des fucus à Diélette et Wimereux. Mais la tendance à la baisse des concentrations se poursuit en 1992 et 1993 chez les deux espèces et dans les diverses stations.

4.2. Rapports isotopiques : comparaison rejets de l'usine de la Hague et espèces

Les rapports isotopiques (RI) du plutonium, pour l'ensemble des espèces entre 1990 et 1993, se situaient entre 0,20 et 1,40. Durant ce temps les valeurs de ce rapport dans les rejets de l'usine de la Hague étaient notablement différentes, 1,05 à 2,30.

Dans les rejets ce rapport a évolué depuis les années 1960 : compris entre 0,10 et 0,25 jusqu'en 1970, augmentant progressivement pour atteindre des valeurs de 0,9, et à partir de 1989, dépassant la valeur de 1. Cette évolution est due à la nature des combustibles retraités qui a varié dans le temps. Les valeurs de RI ont également augmenté chez les espèces, mais pas dans les mêmes proportions (de l'ordre de 0,15 au cours des années 1970, Fraizier et Guary, 1976 ; 0,2 à 0,6 au début des années 1980, Germain et Miramand, 1984 ; et 0,20 à 1,40 pour la présente étude).

TABLEAU IV

Facteurs de concentration (FC) du plutonium 239-240 chez les *Fucus serratus* et *Patella* sp.
239-240 plutonium concentration factors (CF) in *Fucus serratus* and *Patella* sp..

Fucus serratus

- teneurs en plutonium mesurées dans les fucus et mesurées dans l'eau de mer filtrée (*)

	date	Bq/kg ps	Bq/kg pf	Bq/l	FC
Goury	1982-1983	2,028 ± 0,757	0,406	274 × 10 ⁻⁶	1482
Carteret	1992	0,309 ± 0,060	0,068	10 × 10 ⁻⁶	6800
	1992	0,309 ± 0,060	0,068	30 × 10 ⁻⁶	2267
	1993	0,273 ± 0,073	0,066	10 × 10 ⁻⁶	6600
	1993	0,273 ± 0,073	0,066	30 × 10 ⁻⁶	2200
Diélette	1992	0,497 ± 0,253	0,104	10 × 10 ⁻⁶	10400
	1992	0,497 ± 0,253	0,104	30 × 10 ⁻⁶	3467
	1993	0,271 ± 0,038	0,051	10 × 10 ⁻⁶	5100
	1993	0,271 ± 0,038	0,051	30 × 10 ⁻⁶	1700
Rade de Cherbourg	1992	0,310 ± 0,137	0,078	10 × 10 ⁻⁶	7800
	1992	0,310 ± 0,137	0,078	30 × 10 ⁻⁶	2600
	1993	0,270 ± 0,113	0,060	10 × 10 ⁻⁶	6000
	1993	0,270 ± 0,113	0,060	30 × 10 ⁻⁶	2000
	1996	0,237 ± 0,072	0,047	11,2 × 10 ⁻⁶	4196
Wimereux	1992	0,256 ± 0,188	0,046	10 × 10 ⁻⁶	4600
	1992	0,256 ± 0,188	0,046	30 × 10 ⁻⁶	1533
	1993	0,101 ± 0,043	0,019	10 × 10 ⁻⁶	1900
	1993	0,101 ± 0,043	0,019	30 × 10 ⁻⁶	633

* eau de mer : il s'agit des valeurs qui bornent la gamme des valeurs réellement mesurées

- teneurs en plutonium mesurées dans les espèces et estimées dans l'eau de mer (**), en considérant un « bruit de fond » de 9 × 10⁻⁶ Bq/l, et un pourcentage du Pu rejeté soluble (20 %, 50 % et 80 %). (***) = valeur eau de mer estimée = valeur de Goury)

	date	Bq/kg pf	Bq/l 20 %	FC	Bq/l 50 %	FC	Bq/l 80 %	FC
Dielette***	1992	0,104	11,5 × 10 ⁻⁶	9043	15,3 × 10 ⁻⁶	6797	19,1 × 10 ⁻⁶	5445
	1993	0,051	10,9 × 10 ⁻⁶	4679	13,8 × 10 ⁻⁶	3696	16,7 × 10 ⁻⁶	3054
Rade de Cherbourg	1992	0,078	10,3 × 10 ⁻⁶	7573	12,3 × 10 ⁻⁶	6341	14,3 × 10 ⁻⁶	5455
	1993	0,060	10 × 10 ⁻⁶	6000	11,5 × 10 ⁻⁶	4957	13 × 10 ⁻⁶	4385
	1996	0,047	9,37 × 10 ⁻⁶	5016	9,93 × 10 ⁻⁶	4733	10,5 × 10 ⁻⁶	4476
Wimereux	1992	0,046	9,8 × 10 ⁻⁶	4694	11 × 10 ⁻⁶	4182	12,2 × 10 ⁻⁶	3770
	1993	0,019	9,61 × 10 ⁻⁶	1977	10,5 × 10 ⁻⁶	1810	11,4 × 10 ⁻⁶	1667

** estimation faite à partir des rejets de l'usine COGEMA la Hague en utilisant un coefficient de dilution

ps = poids sec
pf = poids frais

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

TABLEAU IV
Suite / Continued.

Patella sp.

- teneurs en plutonium mesurées dans les patelles et mesurées dans l'eau de mer filtrée(*)

	date	Bq/kg ps	Bq/kg pf	Bq/l	FC
Goury	1982-1983	0,732 ± 0,389	0,132	274 x 10 ⁻⁶	482
Carteret	1992	0,075 ± 0,049	0,015	10 x 10 ⁻⁶	1500
	1992	0,075 ± 0,049	0,015	30 x 10 ⁻⁶	500
	1993	0,067 ± 0,023	0,013	10 x 10 ⁻⁶	1300
	1993	0,067 ± 0,023	0,013	30 x 10 ⁻⁶	433
Diélette	1992	0,084 ± 0,035	0,018	10 x 10 ⁻⁶	1800
	1992	0,084 ± 0,035	0,018	30 x 10 ⁻⁶	600
	1993	0,064 ± 0,013	0,012	10 x 10 ⁻⁶	1200
	1993	0,064 ± 0,013	0,012	30 x 10 ⁻⁶	400
Rade de Cherbourg	1992	0,143 ± 0,079	0,031	10 x 10 ⁻⁶	3100
	1992	0,143 ± 0,079	0,031	30 x 10 ⁻⁶	1033
	1993	0,154 ± 0,072	0,032	10 x 10 ⁻⁶	3200
	1993	0,154 ± 0,072	0,032	30 x 10 ⁻⁶	1067
	1996	0,124 ± 0,059	0,029	11,2 x 10 ⁻⁶	2589
Wimereux	1992	0,170 ± 0,081	0,046	10 x 10 ⁻⁶	4600
	1992	0,170 ± 0,081	0,046	30 x 10 ⁻⁶	1533
	1993	0,071 ± 0,020	0,015	10 x 10 ⁻⁶	1500
	1993	0,071 ± 0,020	0,015	30 x 10 ⁻⁶	500

* eau de mer : il s'agit des valeurs qui bornent la gamme des valeurs réellement mesurées

- teneurs en plutonium mesurées dans les patelles et estimées dans l'eau de mer (**), en considérant un « bruit de fond » de 9 x 10⁻⁶ Bq/l. et un pourcentage du Pu rejeté soluble (20 %, 50 % et 80 %). (***) = valeur eau de mer estimée = valeur de Goury)

	date	Bq/kg pf	Bq/l 20 %	FC	Bq/l 50 %	FC	Bq/l 80 %	FC
Diclette***	1992	0,018	11,5 x 10 ⁻⁶	1603	15,3 x 10 ⁻⁶	1206	19,1 x 10 ⁻⁶	967
	1993	0,012	10,9 x 10 ⁻⁶	1055	13,8 x 10 ⁻⁶	835	16,7 x 10 ⁻⁶	691
Rade de Cherbourg	1992	0,031	10,3 x 10 ⁻⁶	3183	12,3 x 10 ⁻⁶	2667	14,3 x 10 ⁻⁶	2295
	1993	0,032	10 x 10 ⁻⁶	3538	11,5 x 10 ⁻⁶	3073	13 x 10 ⁻⁶	2715
	1996	0,029	9,37 x 10 ⁻⁶	3044	9,93 x 10 ⁻⁶	2873	10,5 x 10 ⁻⁶	2721
Wimercux	1992	0,046	9,8 x 10 ⁻⁶	4683	11 x 10 ⁻⁶	4171	12,2 x 10 ⁻⁶	3760
	1993	0,015	9,61 x 10 ⁻⁶	1552	10,5 x 10 ⁻⁶	1417	11,4 x 10 ⁻⁶	1304

** estimation faite à partir des rejets de l'usine COGEMA la Hague en utilisant un coefficient de dilution

ps = poids sec
pf = poids frais

En 1980, des rapports isotopiques supérieurs à 2 ont été observés dans l'eau de mer, mais pas dans les espèces (Germain et Miramand, 1984). Plusieurs types de combustibles étaient retraités et les traitements des effluents ont conduit à des formes physicochimiques dont la biodisponibilité était variable. Les valeurs enregistrées de RI dans l'eau de mer en 1982-1983 étaient de l'ordre de 0,5-0,8, et comprises entre 0,5 et 1,4 en 1992-1994. Hormis les résultats acquis en 1980, les valeurs de RI sont proches entre le vecteur eau de mer et les espèces.

Dans les sédiments, en Manche occidentale, le RI est proche de celui des retombées, de l'ordre de 0,05, alors qu'il se situe entre 0,2 et 0,5 dans le Nord Cotentin et en Manche orientale (Boust, à paraître) témoignant de l'influence de l'usine bien que les valeurs soient inférieures à celles des rejets.

Aux rejets de l'usine de la Hague peuvent s'ajouter d'autres sources influençant la valeur du RI :

- 1) il est possible d'envisager un apport de plutonium soluble en provenance de la mer d'Irlande, l'hypothèse de cet échange entre les mers d'Irlande et de la Manche étant émise pour le césium (Garreau et Bailly du Bois, 1997) ;
- 2) du plutonium, *via* les eaux de l'Atlantique, pénètre en Manche, avec des teneurs de 6 à 9 $\mu\text{Bq l}^{-1}$ de $^{239-240}\text{Pu}$ (Holm *et al.*, 1991 ; Bourlat *et al.*, 1996) ; compte tenu du RI, il provient des retombées des essais d'armes dans l'atmosphère ;
- 3) du plutonium peut provenir de la désorption des sédiments ayant été marqués par des rejets anciens plus abondants et dont le rapport isotopique était inférieur. Si ce phénomène est à confirmer en Manche, il a été observé en mer d'Irlande (Hunt et Kershaw, 1990 ; Condren *et al.*, 1996 ; Cook *et al.*, 1997).

Les rejets de Pu de l'usine de la Hague ayant diminué au cours des années 1980 et 1990, la part relative des autres sources est plus grande, et l'augmentation du RI dans les rejets ne se retrouve pas ainsi d'une manière automatique dans l'environnement.

4.3. Facteurs de concentration

Dans une perspective de prédiction de la fixation des radionucléides par les êtres vivants, des modèles sont utilisés. Souvent ils évaluent les transferts des radionucléides en comparant les concentrations dans l'eau de mer à celles des organismes à l'aide des facteurs de concentration (FC), quel que soit le lieu d'émission de la source radioactive, quelle que soit la localisation du bioindicateur, et l'époque considérée. En fonction des remarques précitées sur l'évolution spatio-temporelle des concentrations dans la mer de la Manche, il nous est apparu intéressant de vérifier si les FC en Manche sont conformes à ceux de la littérature.

À partir des concentrations obtenues *in situ* dans les espèces et l'eau de mer en 1992 et 1993, à Diélette, station proche du point de rejet, les FC pour les fucus sont compris entre 1 700 et 10 400, et pour les patelles entre 400 et 1 800, compte tenu des teneurs dans l'eau situées entre 10 et $30 \times 10^{-6} \text{ Bq l}^{-1}$ (Tab. IV). Les valeurs des FC sont proches entre les isotopes ^{238}Pu et $^{239-240}\text{Pu}$.

En 1982-1983, époque où les valeurs dans l'eau étaient notablement plus élevées du fait des rejets industriels plus importants, les FC obtenus sont de l'ordre de 1 500 pour les fucus et de 400 pour les patelles ; en 1996, en rade de Cherbourg, avec des niveaux dans l'eau proches de $10 \times 10^{-6} \text{ Bq l}^{-1}$, les FC sont de l'ordre de 4 000 pour les fucus et de 2 500 pour les patelles.

À partir des concentrations en plutonium dans l'eau de mer, en un lieu donné, obtenues grâce à un modèle hydrodynamique, les FC sont calculés. Les FC « théoriques » les plus proches de ceux enregistrés à Diélette et à Cherbourg (de l'ordre de 4 000 pour les fucus et de 3 000 pour les patelles) sont ceux obtenus avec un bruit de fond de $9 \times 10^{-6} \text{ Bq l}^{-1}$ et 80 % de $^{239-240}\text{Pu}$ dissous. Les différences des FC sont faibles entre les hypothèses 20, 50 et 80 % de $^{239-240}\text{Pu}$ dissous du fait qu'une part de ces isotopes dans l'eau de mer est imputable aux retombées atmosphériques. Cependant le marquage industriel en Manche est signalé par le rapport isotopique $^{238/239-240}\text{Pu}$, l'essentiel du ^{238}Pu provenant des rejets industriels.

Les valeurs réelles des FC (c'est-à-dire les valeurs mesurées chez les espèces/valeurs mesurées de l'eau de mer) obtenues en 1982-1983 sont plus faibles. Cependant les écarts sont inférieurs d'un ordre de grandeur, et ils sont donc considérés comme peu importants, du fait de tous les paramètres qui influencent les FC, éthologie, métabolisme, voies de transfert, physicochimie des éléments...

Il n'apparaît pas de différences notables des facteurs de concentration pour les fucus et pour les patelles entre les sites étudiés (écarts d'un facteur 2 à 4).

À partir de cette étude, les FC actualisés suivants des isotopes du plutonium sont proposés : 4 000 pour les *Fucus serratus*, 3 000 pour les *Patella* sp ; ils ne correspondent pas à un FC défini « mathématiquement » qui n'aurait pas beaucoup de sens étant donné qu'il est impossible de définir les nombreux paramètres qui influencent les facteurs de concentration.

Ces FC sont dans la gamme de ceux présentés dans d'autres travaux relatifs à des algues et à des mollusques, en particulier de ceux recensés et recommandés par IAEA (1985) : 500 à 5 000 pour les mollusques (FC recommandé 3 000), 500 à 5 000 pour les macroalgues (FC recommandé 2 000). Les travaux réalisés dans la même région, en 1980, ont fourni des FC de 900 à 2 000 pour les *Fucus serratus*, et de 1 200 chez un mollusque bivalve, la moule (Germain et Miramand, 1984). Pentreath (1985) indique pour les chairs des patelles des FC situés entre

650 et 7 000, et dans un autre travail pour la même espèce des valeurs comprises entre 65 et 170 (cité par Ryan, 1997).

5. Conclusions

Dans le cadre de la radioprotection il faut estimer les doses reçues par les populations ou par des groupes de référence. Ces doses peuvent être calculées à l'aide de modèles permettant de quantifier le transfert des radionucléides depuis le point de rejet jusqu'à l'homme. Néanmoins, ces modèles doivent être complétés par des études *in situ*, et à cet égard, le présent travail relatif au plutonium chez des bioindicateurs apporte des informations sur la distribution des isotopes du plutonium le long des côtes de la Manche. Chez les algues (*fucus*) une légère diminution des teneurs en fonction de la distance apparaît entre Cherbourg et Wimereux à près de 300 km à l'est. Ce gradient décroissant n'est pas net dans l'eau de mer et les mollusques (*patelles*). Depuis le début des années 1980 les teneurs en plutonium ont diminué chez les espèces du fait de la diminution des quantités rejetées par l'usine de la Hague. Les concentrations enregistrées chez les espèces (inférieures pour les années les plus récentes à 1 Bq kg⁻¹ sec) sont dues aux rejets industriels, mais aussi à d'autres sources. Ces dernières correspondent, d'une part, à des arrivées d'eaux atlantiques marquées par les retombées d'essais militaires dans l'atmosphère, et d'autre part, à des origines qui nécessitent d'être précisées, tout spécialement celle correspondant à l'hypothèse de plutonium désorbé des sédiments marqués par des rejets anciens. Enfin, les facteurs de concentration ont été révisés, les propositions étant de 4 000 pour les algues, et de 3 000 pour les mollusques, ces FC se situant dans la gamme proposée par la littérature internationale.

Remerciements : *Nous remercions très vivement Melle Landré et MM. Blanchard, Colin, Hémidy, Guivarc'h, Prochasson pour leur participation aux études de transfert du plutonium vers les fucus et les patelles en rade de Cherbourg, ainsi que M. Le Bar pour les informations relatives aux rejets de l'usine COGEMA La Hague.*

RÉFÉRENCES

- Aarkrog A., Dahlgaard H., Duniec J., Guéguénat P., Holm E. (1988) The application of sea weeds as bioindicators for radioactive pollution in the Channel and Southern North Sea. Dans : *Radionuclides: a tool for oceanography*, June 1-6, 1987, Cherbourg, (Guay J.C., Guéguénat P., Pentreath R.J., Eds) pp. 294-303. Elsevier Applied Science, London.
- Bailly du Bois P., Rozet M., Thorat K., Salomon J.C. (1997) Improving knowledge of water-mass circulation in the English Channel using radioactive tracers. Dans : *Radionuclides in the oceans. RADOX 96-97. Proceedings Part 1. Inventories, Behaviour and Processes*, October 7-11, 1996, Cherbourg-Octeville, Numéro spécial de *Radioprotection* (32,C2) (Germain P., Guay J.C., Guéguénat P., Métivier H., Eds) pp. 63-69. IPSN, Les Editions de Physique, Les Ulis.
- Bétis J. (1993) Impact of the la Hague. Reprocessing plant on the surrounding environment. Dans : *Environmental impact of nuclear installations, September 15-18, 1992, Fribourg*, Numéro spécial de *Radioprotection* (Völkle H., Prêtre S., Eds) pp. 33-36. IPSN, Les Editions de Physique, Les Ulis.

FACTEURS DE CONCENTRATION DU PLUTONIUM

- Bourlat Y., Milliès-Lacroix J.C., Le Petit G., Bourguignon J. (1996) ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ in world ocean water samples collected from 1992 to 1994. Dans : *Radionuclides in the oceans. Inputs and Inventories* (Guéguénat P., Germain P., Métivier H., Eds) pp.75-93. Les Editions de Physique, Les Ulis.
- Boust D. Distribution and inventory of source artificial and naturally occurring radionuclides in medium to coarse-grained sediments of the Channel. (Soumis à *Continental Shelf Research*, FluxManche II special issue).
- Condren O.M., Mitchell P.I., Leon Vintro L., Downes A.B. (1996) Plutonium and radiocaesium in western Irish Sea sediments: origin, bioavailability and ultimate fate. Dans : *Irish Marine Science Symposium, September 6-9, 1995, Galway, Proc. Royal Irish Academy* (commemorative volume).
- Cook G.T., MacKenzie A.B., McDonald P., Jones S.R. (1997) Remobilization of Sellafield - derived radionuclides and transport from the north-east Irish Sea, *J. Environ. Radioactivity* **35**, 227-241
- Desprès A. (1995) Les sources de plutonium dans l'environnement, *RGN* **1**, 24-29.
- Fraizier A., Guary J.C. (1976) Recherches d'indicateurs biologiques appropriés au contrôle de la contamination du littoral par le plutonium. Dans : *Transuranium nuclides in the environment*. pp. 679-689. IAEA, Vienna.
- Garcia K., Boust D., Moulin V., Douville E., Fourest B., Guillaumont R. (1996) Multiparametric investigation of the reactions of plutonium under estuarine conditions, *Radiochimica Acta* **74**, 165-170.
- Garreau P., Bailly du Bois P. (1997) Transportation of radionuclides in Celtic Sea a possible mechanism. Dans : *Radionuclides in the oceans. RADOC 96-97. Proceedings Part 1. Inventories, Behaviour and Processes, October 7-11, 1996, Cherbourg-Octeville*, Numéro spécial de *Radioprotection*, **32**, **C2** (Germain P., Guary J.C., Guéguénat P., Métivier H., Eds) pp. 381-385. Les Editions de Physique, Les Ulis.
- Germain P., Miramand P. (1984) Distribution and behaviour of Transuranic elements in the physical and biological compartment of the Channel French shore. Dans : *Proceedings of the second seminar on alpha-particle spectrometry and low-level measurement, May 10-13, 1983, Harwell, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **223** (Sieghahn K., Karlsson E., Eds) pp. 502-509. North-Holland, Amsterdam.
- Germain P., Miramand P., Masson M. (1984) Experimental study of long-lived radionuclides transfers (americium, plutonium, technetium) between labelled sediments and annelidae (*Nereis diversicolor*, *Arenicola marina*). Dans : *International Symposium on the behaviour of long-lived radionuclides in the marine environment, September 28-30, 1983, La Spezia*, Report EUR 9214 EN (Cigna A., Myttenaere C., Eds) pp. 327-340. CEC, Luxembourg.
- Germain P., Masson M., Baron Y. (1990) Contribution aux recherches sur les mouvements des éléments à l'état de traces dans les eaux côtières de la Manche par l'étude de la distribution spatiale de traceurs radioactifs industriels dans les moules et les fucus. Rapport CEA-R-5534.
- Germain P., Pinte G. (1990) Neptunium-237 in the marine environment. Determination in animal and plant species in the English Channel : biological indicators and trophic relationships. Dans : *Proceedings of the second international conference on low level measurements of actinides and long-lived radionuclides in biological and environmental samples, May 16-20, 1988, Akita city. Jour. of Radio. and Nuclear Chem.* **138** (Singh N.P., Ed.) pp. 49-61. Elsevier, Lausanne.
- Germain P., Salomon J.C. (1991) Transport d'éléments à l'état de traces dans les eaux côtières de la Manche : étude de la distribution spatiale d'un traceur radioactif (^{106}Ru -Rh) dans les moules et les fucus. Dans : *Radionuclides in the study of marine processes, September 10-13, 1991, Norwich* (Kershaw P., Woodhead D., Eds) p. 364. Elsevier, London.
- Germain P., Guéguénat P. (1993) Impact of industrial nuclear releases into the English Channel. Dans : *Environmental impact of nuclear installations. September 15-18, 1992, Fribourg*. Numéro spécial de *Radioprotection* (Völkle H., Prêtre S., Eds) pp. 271-275. Les Editions de Physique, Les Ulis.
- Grenaut C., Germain P., 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 IPSN Clamart).
- Holm E., Roos P., Persson R.B.R., Bojanovski R., Aarkrog A., Nielsen S.P., Livingston H.D. (1991) Radiocaesium and plutonium in Atlantic surface waters from 73°N to 72°S. Dans : *Radionuclides in the study of marine processes, September 10-13, 1991, Norwich* (Kershaw P.J., Woodhead D., Eds) pp. 3-11. Elsevier, London.

- Hunt J., Kershaw P. (1990) Remobilisation of artificial radionuclides from the sediments of the Irish Sea, *J. Radiol. Prot.* **10**, 147-151.
- IAEA (1985) *Sediment Kds and concentration factors for radionuclides in the marine environment*, Technical Reports Series n° 247. IAEA, Vienna.
- Masson M., Patti F., Cappelini L., Germain P., Jeanmaire L. (1983) Étude de la dispersion du technetium-99 sur les côtes françaises de la Manche à l'aide de deux indicateurs biologiques : *Fucus* sp. et *Patella* sp., *J. Radioanal. Chem.* **77**, 247-255.
- Métivier H., Colle C., Germain P. (1995-1996) Les actinides et l'homme dans son environnement, *Clefs CEA* **31**, 62-71.
- Miramand P., Germain P., 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.
- Miramand P., Germain P. (1985) Sea water uptake, sediment transfer and histo-autoradiographic study of plutonium (^{239}Pu) and americium (^{241}Am) in the edible cockle *Cerastoderma edule* (L.), *Mar. Ecol. Prog. Ser.* **22**, 59-68.
- Pentreath J. (1985) Radioactive discharges from Sellafield (UK). Dans : *Behaviour of radionuclides released into coastal waters* (IAEA-TECDOC-329) 67-110. IAEA, Vienna.
- Ryan T. (1997) Actinides biokinetics in marine invertebrates - A review. *Radiological Protection Institute of Ireland*, Dublin.
- Salomon J.C., Guéguénat P., Breton M. (1991) Mathematical model of ^{125}Sb transport and dispersion in the Channel. Dans : *Radionuclides in the study of marine processes, September 10-13, 1991*, Norwich (Kershaw J.P., Woodhead D.S., Eds) pp.74-83. Elsevier, London.