Comportement du ^{210}Po en milieu terrestre : revue bibliographique

F. COPPIN¹, S. ROUSSEL-DEBET¹

(Manuscrit reçu le 14 mai 2003, accepté le 21 septembre 2003)

RÉSUMÉ

Cette synthèse bibliographique décrit le comportement du polonium-210 dans l'environnement terrestre. Les sources du ^{210}Po dans l'atmosphère varient notamment avec la localisation géographique et la présence ou l'absence d'activités minières. Dans les sols, le polonium, du fait de son origine atmosphérique, est concentré dans les premiers centimètres. C'est un élément peu mobile qui s'adsorbe sur les surfaces minérales et peut (co)précipiter avec les (oxy)hydroxydes métalliques ou sous forme de sulfure. La voie d'entrée majoritaire du ^{210}Po dans la végétation est le dépôt foliaire qui n'est pas, ou peu, suivi d'incorporation ou de translocation. Le transfert du ^{210}Po aux animaux s'effectue principalement par ingestion, avec des facteurs de transfert relativement élevés. Dans les hydrosystèmes dulçaquicoles, le ^{210}Po est généralement immobilisé sous forme de Po(IV) insoluble et/ou associé à la phase particulaire ou colloïdale. Le plancton, les invertébrés et les poissons concentrent le ^{210}Po , surtout dans les tissus mous. Le polonium, radioélément naturel omniprésent dans l'environnement, est susceptible d'induire pour l'homme une exposition significative par rapport à d'autres radionucléides naturels ou artificiels. Les études — essentiellement des mesures *in situ* — qui lui sont consacrées restent très descriptives, aussi, des travaux expérimentaux permettant de mieux comprendre et de modéliser son comportement dans le milieu terrestre seraient utiles.

ABSTRACT ^{210}Po behaviour in terrestrial environment: a review.

This bibliographical review illustrates the behaviour of ^{210}Po in the terrestrial environment. Sources of ^{210}Po in the atmosphere vary especially with the geographical localization and the occurrence or the absence of mining activities. In soils, polonium, because of its atmospheric origin, is concentrated in the first upper centimeters. ^{210}Po is rather immobile and adsorbed on mineral surfaces; it can (co)precipitate with metallic (oxi)hydroxides or in the form of sulphide. The main transfer pathway of ^{210}Po to vegetation is foliar deposit, which is not, or only slightly, followed by incorporation or translocation. ^{210}Po is transferred to animals mainly by ingestion, with relatively high transfer factors. In freshwaters, ^{210}Po is generally immobile in the form of insoluble Po(IV) and/or associated with the particulate or colloidal phase. Plankton, invertebrates and fish concentrate the ^{210}Po , especially in soft tissues. Polonium, which is an omnipresent natural radionuclide, is likely to occasion a significant exposure to man, compared with other natural or artificial radioisotopes. Nearly all studies derive from *in situ* measurements and are very descriptive, therefore experimental work aiming at a better knowledge and modeling of its behaviour in the terrestrial environment would be useful.

¹ IRSN, Service d'études et de recherches radioécologiques en laboratoire, Laboratoire de radioécologie expérimentale, C.E. Cadarache, B.P. 13, 13115 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex, France.

Introduction

Le polonium est un radioélément naturel de la chaîne de décroissance de l'uranium-238 omniprésent, avec le radon-222 et le plomb-210, dans l'environnement. En moyenne, le ^{210}Po contribuerait à près de 50 % de l'exposition interne due aux séries de l'uranium et du thorium, avec une dose efficace par ingestion de l'ordre de $70 \mu\text{Sv an}^{-1}$ pour l'adulte (Green *et al.*, 2002 ; Pradel *et al.*, 2001). L'exposition dominante provient de l'ingestion de produits agricoles végétaux contaminés par voie atmosphérique et, localement, de la consommation de poissons et produits marins (UNSCEAR, 2000). Comparativement à d'autres radionucléides, le transfert dans l'environnement terrestre du polonium a été relativement peu étudié et peu de travaux expérimentaux lui sont consacrés. Cette synthèse bibliographique fait donc le point des connaissances actuelles concernant cet élément, en termes de comportement et de valeurs de paramètres radioécologiques, dans les compartiments du milieu continental.

1. Caractéristiques et mesure du ^{210}Po

Le polonium appartient au groupe VI du tableau périodique, il est nettement métallique et peut se volatiliser lentement à une température relativement basse (50 % de polonium volatilisé en 45 h à 55 °C selon Lide, 1999). Pour des conditions naturelles moyennes dans l'environnement, c'est-à-dire un pH compris entre environ 3,5 et 9 et un potentiel redox variant approximativement de -200 mV à + 400 mV, le polonium en solution est à l'état + IV — son degré d'oxydation le plus fréquent — et sera vraisemblablement sous la forme d'ions polonates PoO_3^{2-} (van Muyler, 1966). En milieu faiblement acide, il prédomine sous forme de $\text{PoO}(\text{OH})^+$ et de $\text{PoO}(\text{OH})_2$; l'état + II n'existera qu'en milieu fortement acide et les formes PoO_2 et PoO_3^{2-} se rencontreront en milieu alcalin (Lehto *et al.*, 1999).

Le polonium possède 29 radio-isotopes connus dont le ^{210}Po qui est le plus abondant naturellement. C'est un émetteur alpha (5,30 MeV) de période radioactive égale à 138,4 jours, dont le descendant est le ^{206}Pb stable (Magill, 2003).

La préparation des échantillons en vue de la mesure du polonium s'effectue par minéralisation acide par voie humide à des températures n'excédant pas 250 °C (Chen *et al.*, 2001 ; Clayton et Bradley, 1995 ; Holtzman *et al.*, 1979 ; Jia *et al.*, 2000 ; Miura *et al.*, 1999). Le ^{210}Po est isolé par radiochimie ; le ^{208}Po ou le ^{209}Po sont utilisés afin de quantifier le rendement de la procédure (Houmani *et al.*, 2001 ; Skwarzec, 1997). Le polonium est ensuite (électro)déposé sur un disque d'argent à une température de 90 °C avec un rendement voisin de 90 % (Chen *et al.*, 2001 ; Jia *et al.*, 2000 ; Khandekar, 1977 ; Lapham *et al.*, 1989). Il est mesuré par

TABEAU I
Concentrations du ^{210}Po dans l'atmosphère.
Atmospheric ^{210}Po concentrations.

Localisation	Concentration (Bq m^{-3})	Référence
Allemagne	$2,5 \times 10^{-5}$ – $1,9 \times 10^{-4}$	Schüttelkopf et Kiefer, 1981
Angleterre	$2,6 \times 10^{-6}$ – $8,6 \times 10^{-5}$	Bradley, 1993
Côte d'Ivoire	$1,8 \times 10^{-5}$ – $10,0 \times 10^{-4}$	Nho-Kim, 1996
France	$2,0 \times 10^{-5}$ – $1,0 \times 10^{-4}$	Marengo et Fontan, 1972 ^a
Inde	$2,2 \times 10^{-5}$ – $9,0 \times 10^{-5}$	Anand et Rangarajan, 1990 ^{a, b}
ex-URSS	$5,6 \times 10^{-5}$ – $2,2 \times 10^{-4}$	Ladinskaya <i>et al.</i> , 1973
USA	$1,3 \times 10^{-5}$ – $4,0 \times 10^{-5}$	Moore <i>et al.</i> , 1976 ^a
Gamme mondiale	$2,2 \times 10^{-6}$ – $2,6 \times 10^{-4}$	Parfenov, 1974
Proximité d'une mine d'uranium		
Australie	$6,0 \times 10^{-5}$	Martin, 2003
Canada	$7,9 \times 10^{-6}$ – $9,2 \times 10^{-5}$	Thomas, 2000
Russie	$2,0 \times 10^{-2}$ – $1,5 \times 10^{-1}$	Benedik et Vrecek, 2001

^a in : Bradley, 1993 ; ^b présence d'activités industrielles.

spectrométrie alpha. Une deuxième mesure 6 à 12 mois après la première est souvent préconisée pour calculer la quantité de ^{210}Po issu de la désintégration du ^{210}Pb entre les dates d'échantillonnage et d'analyse (Carvalho, 1990 ; Garcia-Orellana et Garcia-Leon, 2002).

2. Origines et fluctuations du ^{210}Po dans l'atmosphère

La concentration du ^{210}Po atmosphérique (Tab. I) est comprise entre $2,2 \times 10^{-6}$ et $1,5 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$ avec une moyenne de $48 \times 10^{-6} \text{ Bq m}^{-3}$ (Carvalho, 1995 ; Winkler *et al.*, 1981), le flux d'entrée atmosphérique étant estimé à environ $3,6 \times 10^{15} \text{ Bq an}^{-1}$ (Nho-Kim, 1996).

La source principale du ^{210}Po est sa formation par exhalation du radon ^{222}Rn à partir des couches superficielles de l'écorce terrestre, *via* le ^{210}Pb puis le ^{210}Bi , précurseur direct du ^{210}Po . Ces radionucléides se fixent rapidement sur les aérosols atmosphériques et retombent à la surface de la terre et des océans. D'autres sources globales existent : les aérosols stratosphériques et les émissions volcaniques, dont les contributions à l'enrichissement des couches inférieures de l'atmosphère (< 6 km) seraient respectivement de 1 à 5 % et de 50 % (Nho-Kim, 1996 ; Sabroux, 1998). Par ailleurs, les émissions des fumées de feux de biomasses participeraient à 6 % du ^{210}Po atmosphérique (Nho *et al.*, 1996). Certaines zones côtières peuvent être enrichies par la production de ^{210}Po volatil dans la micro-couche superficielle océanique, ce qui a été mis en évidence par l'augmentation

locale du rapport isotopique $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$: environ 0,33 dans l'air marin et une moyenne de 0,10 dans l'air continental (Hussain *et al.*, 1998 ; Kim *et al.*, 2000).

L'activité anthropique peut augmenter très fortement les concentrations locales de ^{210}Po dans l'air. Selon l'UNSCEAR (2000), les rejets mondiaux atmosphériques de ^{210}Po seraient de l'ordre de 660 GBq an^{-1} , dont 490 GBq an^{-1} pour les industries des phosphates, 90 GBq an^{-1} pour l'extraction du fer et la métallurgie, 78 GBq an^{-1} pour les cimenteries, une faible part étant imputable aux mines de charbon, aux forages pétroliers et aux centrales thermiques (Flues *et al.*, 2002). La concentration du polonium dans les minerais d'uranium ($0,05$ à $0,07 \mu\text{g kg}^{-1}$ dans la pechblende contre $0,2 \text{ pg kg}^{-1}$ dans la croûte terrestre) et l'émanation du radon dans les mines est à l'origine de « sur-concentrations » dans leur voisinage, notamment sur les sites de stockage des résidus miniers (Thomas, 2000).

En plus de la variabilité spatiale et temporelle de l'exhalation du ^{222}Rn , la dispersion des concentrations du polonium mesurées dans l'air résulte aussi de variations locales et/ou saisonnières, susceptibles d'affecter le dépôt et la remise en suspension. L'étude de Karunakara *et al.* (2000) portant sur la région de Kaiga en Inde montre que le flux de dépôt du ^{210}Po y est élevé ($54 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) par rapport à d'autres régions à cause de la situation encaissée du site. Par ailleurs, la concentration du ^{210}Po fluctue selon la saison (Anand et Rangarajan, 1990 ; Marengo et Fontan, 1972 ; Nho *et al.*, 1996 ; Winkler *et al.*, 1981). En général, les concentrations du ^{210}Po atmosphérique sont plus élevées pendant les périodes sèches car les pluies lessivent le ^{210}Po atmosphérique augmentant son dépôt lors des périodes humides (Karunakara *et al.*, 2000). Ainsi, Thomas (2000) montre aux alentours de l'usine de production d'uranium du lac Key au Canada que le flux de dépôt initial du ^{210}Po provient surtout de l'eau de pluie ; $0,14 \text{ Bq m}^{-2} \text{ j}^{-1}$ pour le dépôt humide et $0,032 \text{ Bq m}^{-2} \text{ j}^{-1}$ pour le dépôt sec. Cependant, une situation géographique et climatique particulière peut induire une augmentation saisonnière du dépôt sec, comme par exemple à Lamto (Côte d'Ivoire) où un apport de poussières sahariennes accroît fortement la concentration atmosphérique en ^{210}Po et son dépôt pendant la saison sèche (Nho *et al.*, 1996).

La gamme mondiale des concentrations du ^{210}Po dans les eaux de pluies varie d'environ 1×10^{-3} à $1 \times 10^{-1} \text{ Bq l}^{-1}$ (Bradley, 1993 ; Parfenov, 1974). La concentration des eaux de pluies recueillies à proximité des mines d'uranium est comparable à celle des sites témoins (Martin, 2003 ; Thomas, 2000).

La concentration du ^{210}Po dans les eaux de pluie est influencée par la teneur atmosphérique en ^{210}Po , sa distribution spatiale, la taille des aérosols auxquels le ^{210}Po est associé, le type et la durée des précipitations (Martin, 2003). Des mesures

Figure 1 – Ordre de grandeur des concentrations et principales voies de transfert du ^{210}Po dans l'environnement terrestre.

Order of magnitude of concentrations and main transfer pathways of ^{210}Po in terrestrial environment.

de concentration du ^{210}Po dans des eaux d'orages de la région de Jabiru (Australie) montrent que le ^{210}Po est entraîné majoritairement au début des épisodes pluvieux et qu'il est probablement lié à la phase particulaire des eaux (Martin, 2003).

En définitive, dans le milieu terrestre, le comportement du polonium va présenter des particularités, non pas du fait de ses propriétés chimiques intrinsèques, mais à cause de sa provenance (atmosphère et surface du sol) qui va largement dominer ses modalités de transfert aux végétaux (Fig. 1).

3. Comportement dans le système sol – atmosphère – végétal

3.1. Le polonium dans les sols

L'activité massique du ^{210}Po présent dans les sols (Tab. II) varie de plusieurs ordres de grandeur, en fonction de la localisation géographique du sol, de sa nature (Parfenov, 1974) et de la profondeur considérée (Karunakara *et al.*, 2000 ;

TABLEAU II
Concentrations du ^{210}Po dans les sols de surface.
 ^{210}Po concentrations in surface soils.

Localisation	^{210}Po (Bq kg^{-1} sol sec)	Référence
Allemagne	11–207	Bunzl et Kracke, 1984 ^a ; Schüttelkopf et Kiefer, 1981
Angleterre	51	Smith-Briggs et Bradley, 1984 ^a
Brésil	27–74	Santos <i>et al.</i> , 1990 ^b
Espagne	16–778	Martínez-Aguirre et García-Léon, 1996 ^c
Inde	4–223	Singh et Nilekani, 1976 ^a ; Karunakara <i>et al.</i> , 2000 ; Siddappa <i>et al.</i> , 1994
Malaisie	8	Houmani <i>et al.</i> , 2001
USA	10–59	Singh et Nilekani, 1976 ^a ; USAEC, 1980
Gamme mondiale	8–219	Parfenov, 1974
Allemagne	22–59	Rosner <i>et al.</i> , 1984 ^d
Canada	28–22 000	Thomas, 2000 ^b
USA	70–15 000	Lapham <i>et al.</i> , 1989 ^b

^a in : Bradley, 1993 ; ^b proximité d'une mine d'uranium ; ^c proximité d'une usine de phosphates ; ^d proximité d'une centrale à charbon.

Thomas, 2000). En l'absence de perturbations locales, les valeurs mesurées varient d'environ 10 à 200 $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$. Ces valeurs sont très fortement influencées par la présence d'activités génératrices de polonium, particulièrement à proximité des mines d'uranium où l'activité massique du ^{210}Po peut atteindre 15 000 à 22 000 $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$ (Lapham *et al.*, 1989 ; Thomas, 2000).

En raison des retombées atmosphériques, l'activité massique du ^{210}Po dans les profils de sols présente systématiquement une valeur plus élevée en surface (environ 0–10 cm) que dans les couches plus profondes où le ^{210}Po est en équilibre avec le ^{210}Pb et le ^{222}Rn à des valeurs voisines de quelques dizaines de $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$. On observe cette répartition sur les profils de sol du site de Kaiga en Inde (Karunakara *et al.*, 2000) : l'activité du ^{210}Po d'environ 130 $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$ dans la couche 0–5 cm diminue avec la profondeur pour se stabiliser au delà de 25 cm à environ 9 $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$. À proximité d'une mine d'uranium, l'activité du ^{210}Po dans la litière et dans les premiers centimètres est jusqu'à 2 ordres de grandeur plus élevée sur les sols influencés par la présence de la mine que sur les sols témoins ; par contre, les activités des couches plus profondes, > 10 cm, sont les mêmes dans les deux cas (environ 10 $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$; Thomas, 2000).

Pour des conditions moyennes des horizons superficiels, le polonium, vraisemblablement sous forme d'ions polonates PoO_3^{2-} , peut s'hydrolyser, se complexer et former des précipités. L'influence de la taille des particules de sol sur

sa rétention est controversée : alors que Karunakara *et al.* (2000) n'observent aucune variation de l'activité massique du ^{210}Po suivant la taille des particules (jusqu'à 350 μm), Al-Masri et Al-Bich (2002) notent une augmentation de l'activité massique du ^{210}Po lorsque la taille des particules diminue. En outre, l'enrichissement relatif en ^{210}Po des (oxy)oxydes de fer, supposé par Benoit et Hemond (1988), est effectivement mesuré par McCubbin *et al.* (2000). Ulrich et Degueldre (1993) étudient l'adsorption et la désorption du ^{210}Po , du ^{210}Pb et du ^{210}Bi sur une montmorillonite omo-ionique sodique en fonction du pH et de la force ionique par des expériences en « batch ». L'adsorption du ^{210}Pb augmente avec le pH (de 5 à 7) et la diminution de la force ionique (de 0,2 à 0,01 eq l^{-1}), alors qu'aucun effet n'est observé pour le ^{210}Po . Les auteurs supposent que le plomb ne s'hydrolyse pas dans les conditions de l'expérience alors que le bismuth et le polonium, hydrolysés sous forme respectivement de $\text{Bi}(\text{OH})_3$ et de $\text{Po}(\text{OH})_2$ s'adsorbent sur les sites amphotères de bordures, principalement $>\text{Al}-\text{OH}$. À pH 5,8, l'adsorption du ^{210}Pb est réversible contrairement à celle du ^{210}Bi et du ^{210}Po . Les coefficients de partage (K_d) pour le ^{210}Po varient de 1 200 à 3 200 l kg^{-1} et de $1,6 \times 10^5$ à $2 \times 10^5 \text{ l kg}^{-1}$ respectivement pour les expériences d'adsorption et de désorption, ce qui correspond bien à un processus non réversible. Une autre étude montre une très forte adsorption du ^{210}Po sur une bentonite, une granodiorite et un tuf, à des pH d'environ 10 (Baston *et al.*, 1999). Lors de la séparation solide-solution les K_d augmentent de 150 à 83 000 l kg^{-1} lorsque la maille de filtration des particules diminue. Ceci corrobore l'étude d'Ulrich et Degueldre (1993) qui suggèrent que le ^{210}Po a la capacité de s'associer avec les colloïdes. Par analogie, on peut supposer que, dans les sols, le ^{210}Po s'adsorbe irréversiblement sur les sites amphotères de bordure des argiles, que la quantité adsorbée ne dépend pas de la force ionique, et qu'elle peut augmenter avec le pH (phénomène non observé par Ulrich et Degueldre (1993) car la gamme de pH étudiée était trop restreinte). Ceci peut expliquer en partie pourquoi le ^{210}Po est très peu mobile dans les sols.

Karunakara *et al.* (2000) observent que l'activité massique des sols cultivés est inférieure d'un facteur 4 à 5 à celle des sols forestiers dans lesquels la litière, composée de végétaux en décomposition, peut être une source de ^{210}Po . Santos *et al.* (1990) et Carvalho (1995) ont, quant à eux, souligné que l'utilisation d'engrais à forte teneur en ^{210}Po (jusqu'à 679 $\text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$) sur les sols agricoles pouvait en augmenter la concentration.

L'activité microbienne qui est également susceptible d'influencer la mobilité des radionucléides présents dans les sols (Deneux-Mustin *et al.*, 2003) semble jouer un rôle sur la mobilité du ^{210}Po . En effet, comme le ^{210}Po peut se complexer avec les sulfates (Al-Masri et Al-Bich, 2002) les facteurs influençant le cycle du soufre pourraient modifier sa disponibilité (Harada *et al.*, 1989). LaRock *et al.*

(1996) montrent que les bactéries sulfato-réductrices libèrent le ^{210}Po lors de la réduction des sulfates du phosphogypse ; cependant, lorsque la concentration de sulfures dépasse $10\ \mu\text{M}$, un précipité de PoS_2 est formé et dans ce cas le rôle des bactéries serait de stabiliser le ^{210}Po dans la phase minérale. En outre, le ^{210}Po , connu pour former des complexes en présence de matière organique (Benoit et Hemond, 1988 ; Vaaramaa *et al.*, 2000), peut se complexer avec des métabolites organiques microbiens et être ensuite remobilisable sous cette forme. L'activité microbiologique agit aussi sur le comportement du ^{210}Po dans les hydrosystèmes (Momoshima *et al.*, 2002 ; Swarzenski *et al.*, 1999).

Très peu de valeurs de K_d mesurées sur des sols sont disponibles, à l'exception des mesures de Hansen et Watters (1971) in Thibault *et al.* (1990) sur des sols des États-Unis. Les sols sableux acides, avec une teneur très faible en argiles, ont généralement des K_d faibles (de l'ordre de 10 à 100) ; les sols basiques présentent des valeurs de K_d plus élevées (de l'ordre de 100 à 1 000, voire davantage). Les valeurs génériques du K_d proposées par l'IAEA (1994) sont des estimations, qui reposent sur ce seul ensemble d'expérimentations ; la valeur de K_d « sols agricoles » préconisée par Baes-III *et al.* (1984), i.e. $K_d = 540$ (fourchette de l'ordre de 200 à 1 000) semble être une estimation moyenne convenable par défaut pour la majorité des sols agricoles.

3.2. Transfert du ^{210}Po aux végétaux terrestres

La gamme mondiale des activités massiques du ^{210}Po dans les végétaux varie entre environ $0,1$ et $160\ \text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$ pour des zones non soumises à une activité anthropique (Tab. III). Le ^{210}Po est principalement issu du transfert foliaire consécutif au dépôt direct d'aérosols secs ou humides et à la remise en suspension de particules de sols (Francis *et al.*, 1968 ; Skwarzec *et al.*, 2001a). Thomas (2000) montre que le flux de dépôt résultant de la remise en suspension est 4 fois plus important que celui lié aux dépôts sec et humide. Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak (1995) comparent durant 3 ans différents végétaux protégés ou non des retombées atmosphériques. Dans les deux cas la concentration du ^{210}Po est identique dans les parties des plantes protégées du dépôt (grains, tubercules, racines) alors que dans le cas des feuillages, l'activité massique est plus élevée, en moyenne d'un facteur 5, pour les végétaux non protégés. Skwarzec *et al.* (2001a) ont également observé que le polonium se concentre davantage dans les feuilles de tabac que dans le reste de la plante (feuilles, racines, tige : $50,7$, $16,7$ et $3,7\ \text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$). En outre, la concentration des feuilles proches du sol, les plus vieilles ($136,3\ \text{Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$), est nettement supérieure à celle des racines. Des résultats similaires sont obtenus par Thomas (2000) lors de la mesure d'aiguilles d'épicéas et de pins aux alentours du lac Key, montrant l'importance du dépôt

TABLEAU III
Concentrations du ^{210}Po dans les végétaux.
 ^{210}Po concentrations in terrestrial plants.

1 — Milieu non perturbé [Undisturbed area].

Localisation	Végétal	Activité massique (Bq kg^{-1} végétal sec ^a)	Référence
Allemagne	herbe et foin	1,1–29,6	Schüttelkopf et Kiefer, 1981
Allemagne	herbe	22–160	Bunzl et Kracke, 1984 ^a
	bruyère	20–88	
	genévrier	20–38	
	myrtille	34	
Angleterre	herbe	6,5–29	Hill, 1965 ^a
Monde entier	herbe	2,0–35	Jaworowski, 1969 ^a
Inde	tabac	0,1–3,3	Singh et Nilekani, 1976 ^a
Monde entier	tabac	5,6–57	Parfenov, 1974
Angleterre	lichen	290–370	Hill, 1965 ^a
Portugal	légumes	0,084 ^b	Carvalho, 1990
	fruits	0,060 ^b	
	arbres	0,37 ^b	

2 — Milieu soumis à une perturbation humaine [Disturbed area].

Localisation	Végétal	Activité massique (Bq kg^{-1} végétal sec)	Référence
Brésil, mine d'uranium à 1 km	légumes	1–8	Santos <i>et al.</i> , 1990
Canada, mine d'uranium du lac Key	aiguilles d'épicéa	84	Thomas, 2000
	thé du labrador	1 300	
Cotswolds, Angleterre	herbe	4–25	Smith-Briggs, 1984 ^a
Espagne, proximité d'usine d'acide phosphorique	<i>Spartina persiflora</i>	5,7–21,2	Martínez-Aguirre et García-León, 1996
	<i>Spartina maritima</i>	5,1–40,6	

^a in : Bradley, 1993 ; ^b moyenne, végétaux frais.

foliaire de particules de sol (« splash » ou remises en suspension). Des valeurs du facteur de transfert global (Fg), égal au rapport entre l'activité massique du végétal et la densité de dépôt, peuvent être déduites des essais de Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak (1995). Les valeurs de Fg sont supérieures pour les parties aériennes des végétaux ($\text{Fg} = 0,86 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$) à celles observées pour les parties protégées (grains de céréales : $\text{Fg} = 0,07 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$; racines de légumes et racines : $\text{Fg} = 0,03 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$), ce qui traduit l'importance relative de la contamination foliaire directe. Différents facteurs, non spécifiques au ^{210}Po , peuvent influencer le transfert foliaire : le flux de dépôt, la forme et la surface du

feuillage, le lieu de l'interception et la durée d'exposition (Karunakara *et al.*, 2000 ; Parfenov, 1974 ; Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak, 1995). Les mousses et les lichens, qui ont une longue période végétative et qui puisent leur nourriture uniquement au niveau atmosphérique, présentent une concentration élevée en ^{210}Po (Karunakara *et al.*, 2000) et sont des bio-indicateurs particulièrement pertinents du polonium (Schüttelkopf et Kiefer, 1981).

Le transfert racinaire, *i.e.* du sol vers les végétaux, du ^{210}Po a été mis en évidence, mais il ne constitue généralement pas la source principale du polonium dans les plantes (D'Souza et Mistry, 1970 ; Karunakara *et al.*, 2000 ; Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak, 1995 ; Tso *et al.*, 1966 ; Watters et Hansen, 1970). Des expériences hydroponiques réalisées sur des plants de haricots mettent en évidence un facteur de transfert vers les racines variant de 400 à 3 300 $\text{l kg}^{-1} \text{sec}^{-1}$, le facteur de transfert vers les parties aériennes variant de 0,05 à 0,58 $\text{l kg}^{-1} \text{sec}^{-1}$, ce qui est le signe d'une translocation très faible (Athalye *et al.*, 1995 ; D'Souza et Mistry, 1970). Ce phénomène a été aussi observé *in situ* par Karunakara *et al.* (2000), Santos *et al.* (1990), Skwarzec *et al.* (2001a) et Thomas (2000).

Le tableau IV résume les valeurs des facteurs de transfert racinaire (F_t), valeurs surestimées pour les feuilles soumises aux retombées atmosphériques. Les caractéristiques physico-chimiques du sol et spécialement le pH jouent aussi un rôle dans le transfert racinaire : ainsi observe-t-on une diminution d'un facteur 5 du $F_{t\text{sol} \rightarrow \text{maïs}}$ entre un sol à pH 8,5 et un sol à pH 5,9 (Athalye *et al.*, 1995).

Ces résultats laissent supposer que le ^{210}Po sera très peu mobile au sein de la plante, et donc que le ^{210}Po absorbé *via* le sol restera dans les racines, alors que celui provenant des dépôts restera au niveau de la partie aérienne.

4. Transfert du ^{210}Po aux animaux

Des travaux ont porté sur le ^{210}Po dans le cadre d'études sur l'effet des émetteurs alpha sur le métabolisme animal (Rencova *et al.*, 1997 ; Stannard et Casarett, 1964). La demi-vie biologique du ^{210}Po dans les animaux est de l'ordre de quelques mois et varie suivant les organes et les espèces (Torvik *et al.*, 1974). La décroissance du ^{210}Pb au sein des organismes peut être une source de ^{210}Po pour les espèces ayant une espérance de vie relativement longue, comme dans le cas du bétail (Lapham *et al.*, 1989). Les activités massiques du ^{210}Po dans les animaux varient de 4 ordres de grandeur suivant les animaux et les organes (Tab. V).

Chez les mammifères l'activité massique du ^{210}Po est généralement plus élevée dans les viscères et dans les os que dans les muscles (Beasley et Palmer, 1966 ; Thomas et Gates, 1999). Chez les volailles, ce sont le foie et le gésier qui

TABLEAU IV
Facteurs de transfert racinaire.
Soil-to-plant transfer factors.

Végétal	Partie	Ft (kg _{sol} sec kg ⁻¹ végétal sec)	Type de mesures	Référence
Spartine (<i>Spartina densiflora</i> et <i>S. maritima</i>)	tiges et feuilles	$1,2 \times 10^{-1}$ ($2,2 \times 10^{-2}$ à $4,5 \times 10^{-1}$)	<i>in situ</i> ^a	Martinez-Aguirre et Garcia-Leon, 1996
légumes	parties aériennes	$4,3 \times 10^{-2}$	expérimentation ^b	Pietrzak-Flis et Skowronska-Smolak, 1995
légumes	racines	$2,6 \times 10^{-2}$		
céréales	grains	$2,6 \times 10^{-2}$		
légumes	feuilles	$4,2 \times 10^{-4}$	expérimentation ^c	Watters et Hansen, 1970
céréales	grains	$6,3 \times 10^{-6}$		
légumes	racines	$2,4 \times 10^{-4}$		
fruits	fruits	$1,2 \times 10^{-5}$		
légumes	feuilles	$1,5 \times 10^{-1}$	expérimentation ^d	Santos <i>et al.</i> , 1990
légumes	racines	$1,5 \times 10^{-1}$		
légumes	feuilles	$1,2 \times 10^{-2}$	<i>in situ</i> ^e	Carvalho, 1990
fruits	fruits	$5,8 \times 10^{-3}$		
arbres	parties aériennes	$2,9 \times 10^{-2}$		
maïs	feuilles	$4,9 \times 10^{-2}$ (pH 5,9)	expérimentation ^f	Athalye <i>et al.</i> , 1995
maïs	feuilles	$1,0 \times 10^{-2}$ (pH 8,5)		
fourrages	—	$1,0 \times 10^{-1}$	valeur générique	IAEA, 2001
cultures	—	$2,0 \times 10^{-3}$	valeur générique ^g	IAEA, 2001
tous végétaux	parties aériennes	$2,5 \times 10^{-3}$	valeur générique	Baes-III <i>et al.</i> , 1984
tous végétaux	parties racinaires	$4,0 \times 10^{-4}$	valeur générique	Baes-III <i>et al.</i> , 1984

^a Mesures *in situ*, estuaire proche d'une usine d'acide phosphorique (Portugal), plantes collectées à marée basse dans une zone inondée à marée haute ; ^b champ expérimental, sols sablonneux (pH 5,9 et 7,4), plantes protégées par une tente ; ^c milieu contrôlé, sol reconstitué (pH 7,6), contamination en ²¹⁰Po : 18,5 à 185 kBq kg⁻¹ sol sec ; ^d sol de jardin brésilien enrichi en ²¹⁰Po par un apport d'engrais ; ^e Sacavem (Portugal), fruits et légumes achetés sur le marché ; ^f milieu contrôlé, contamination initiale en ²¹⁰Po : 259 kBq kg⁻¹ sol sec ; ^g facteur de transfert en Bq kg⁻¹ végétal frais par Bq kg⁻¹ sol sec.

concentrent le polonium (Izak-Biran *et al.*, 1989). Les facteurs de transfert nourriture → animaux (j kg⁻¹ frais) utilisés dans les modèles d'évaluation sont généralement définis comme étant le rapport de l'activité massique de l'élément dans l'animal (ou dans une partie consommable : muscle, abats...) à la quantité quotidienne d'élément ingérée par l'animal. L'activité journalière consommée par les animaux n'étant pas toujours connue, le rapport des concentrations entre deux niveaux trophiques est parfois utilisé (kg kg⁻¹). Ces facteurs, qui sont regroupés dans le tableau VI, sont parfois calculés à partir du contenu stomacal des animaux,

TABLEAU V
Concentrations du ^{210}Po dans les organes et les produits d'origine animale.
 ^{210}Po concentrations in organs and animal products.

Produits	^{210}Po (Bq kg^{-1} frais)	Référence
viande (mouton)	0,11–0,43	Khandekar, 1977 ; Ladinskaya <i>et al.</i> , 1973
viande (bœuf et porc)	$3,7 \times 10^{-2}$ –2,0	Globel et Muth, 1980 ^a
foie (bœuf, agneau et mouton)	0,15–120	Bunzl <i>et al.</i> , 1979 ; Bunzl et Kracke, 1984 ^a ; Hill, 1965 ^a ; Jaworowski, 1969 ^a
foie (poulet)	0,21–1,03	Izak-Biran <i>et al.</i> , 1989
foie (caribou)	332	Thomas, 2000
rein (bœuf, agneau et mouton)	0,74–67	Bunzl <i>et al.</i> , 1979 ; Hill, 1962, 1965 ^a ; Jaworowski, 1969 ^a
gésiers (poulet)	0,48	Izak-Biran <i>et al.</i> , 1989
abats	0,19–37 ^b $6,2 \times 10^{-2}$	Parfenov, 1974 ; Smith-Briggs <i>et al.</i> , 1986 ^a
lait	$3,3 \times 10^{-3}$ – $6,7 \times 10^{-2}$	Parfenov, 1974 ; Schüttelkopf et Kiefer, 1981
œufs	0,11–37	Globel et Muth, 1980 ^a ; Izak-Biran <i>et al.</i> , 1989 ; Smith-Briggs <i>et al.</i> , 1986 ^a

^a in : Bradley, 1993 ; ^b préparé pour la consommation.

TABLEAU VI
Transferts du ^{210}Po aux animaux.
 ^{210}Po transfer to animals.

1 — Facteurs de concentration source → animaux (Bq kg^{-1} frais par Bq kg^{-1} sec) mesurés *in situ*
[In situ concentration factors source → animals (Bq kg^{-1} f.w. by Bq kg^{-1} d.w.)].

Lieu	Source → cible	Facteur de concentration	Référence
Lacs (Canada)	lichen → caribou	$1,0 \times 10^{-1}$	Thomas <i>et al.</i> , 1994
	caribou → loup	$4,0 \times 10^{-1}$	
	contenu stomacal → caribou	$2,6 \times 10^{-1}$	
	contenu stomacal → campagnol	$1,4 \times 10^{-1}$ à $5,0 \times 10^{-1}$	Thomas, 2000
Nouveau Mexique (USA)	végétation → bétail	$1,2 \times 10^{-2}$ à $1,1 \times 10^{-1}$	Lapham <i>et al.</i> , 1989

2 — Facteurs de transfert aux produits d'origine animale (Bq kg^{-1} frais par Bq j^{-1})
[Transfer factors to animal productions (Bq kg^{-1} f.w. by Bq d^{-1})].

lait (valeurs génériques)	$3,0 \times 10^{-3}$	IAEA, 2001
	$3,4 \times 10^{-4}$	IAEA, 1994
	$3,5 \times 10^{-4}$	Baes-III <i>et al.</i> , 1984
	$5,0 \times 10^{-3}$	IAEA, 2001
viande (valeurs génériques)	$5,0 \times 10^{-3}$ (6×10^{-4} à 5×10^{-3})	IAEA, 1994
	$9,5 \times 10^{-5}$	Baes-III <i>et al.</i> , 1984
	3,1	Izak-Biran <i>et al.</i> , 1989
œuf		

TABLEAU VII
Concentrations du ^{210}Po dans les eaux douces et les sédiments.
 ^{210}Po concentrations in freshwaters and sediments.

Localisation	^{210}Po dans l'eau (mBq l ⁻¹)	^{210}Po dans les sédiments (Bq kg ⁻¹ frais) sauf ^a	Références
rivière de Kaveri, Tiruchirappalli (Inde)	0,77–1,27	14,4–26,5	Shaheed <i>et al.</i> , 1997
étang Mutharasannallur, Tiruchirappalli (Inde)	1,4	60	Hameed <i>et al.</i> , 1997
rivière, proximité d'une usine d'engrais, Cochin (Inde)	< 1–9 moyenne : 1,4	12–166 moyenne : 70	Haridasan <i>et al.</i> , 2001
eau de surface Gdansk (Pologne)	0,33		Skwarzec <i>et al.</i> , 2001b
Rostov (ex-URSS)	$1,8 \times 10^{-3}$		Ladinskaya <i>et al.</i> , 1973
proximité d'une usine de pétrole brut		0,01–0,13 ^a	Houmani <i>et al.</i> , 2001
Tage (Portugal) matières en suspension		81–168 ^a	Carvalho, 1995

^a Bq kg⁻¹_{sec}.

ce qui peut en modifier la valeur. On peut souligner que le facteur de transfert du ^{210}Po à l'animal (petits mammifères, bétail) est plus faible pour les sites proches des mines d'uranium que pour les sites témoins, bien que les concentrations dans les animaux soient plus élevées en valeur absolue (Lapham *et al.*, 1989 ; Thomas, 1994, 1995, 2000 ; Thomas *et al.*, 1994 ; Thomas et Gates, 1999). Cette observation est attribuée à une incorporation moindre du ^{210}Po associé aux grosses particules issues des résidus miniers que du ^{210}Po associé aux particules naturelles, plus petites, lors de l'ingestion de sol par les animaux.

5. Comportement dans les hydrosystèmes d'eau douce

La complexation du ^{210}Po avec les ions en solution est très peu référencée. Bien que dans le cas des pH les plus bas ou en conditions anoxiques il puisse être sous forme de Po(II) soluble, le ^{210}Po est généralement présent dans les eaux naturelles à l'état Po(IV), très peu soluble (Benoit et Hemond, 1988 ; Harada *et al.*, 1989). Figgins (1961) estime que la constante de dissociation du $\text{Po}(\text{OH})_4$ est de l'ordre de 1×10^{-37} . Cette insolubilité confère au ^{210}Po une forte affinité pour la phase particulaire, mise à profit dans les traitements de potabilisation de l'eau (Gafvert *et al.*, 2002 ; Vaaramaa *et al.*, 2000).

Les activités massiques du ^{210}Po sont beaucoup plus élevées dans les sédiments que dans l'eau (Tab. VII), y compris à proximité d'industries polluantes : usine de fabrication d'engrais (Haridasan *et al.*, 2001), complexe pétrolier (Houmani *et al.*, 2001). Il n'existe pas, à notre connaissance, d'études

spécifiques relatives à la détermination des K_d du ^{210}Po entre l'eau et les MES (ou les sédiments), pour les eaux douces. Une valeur par défaut de $1,0 \times 10^4 \text{ Bq kg}^{-1}_{\text{sec}}$ par Bq l^{-1} est utilisée par le NRPB (Simmonds *et al.*, 1995).

Les variations de conditions oxygène/anoxique dans les sédiments peuvent modifier le comportement du ^{210}Po . Ainsi, Balistrieri *et al.* (1995), lors de l'étude du lac Smammish (USA), observent que le ^{210}Po de la colonne d'eau diminue lors du passage d'un état oxygène à un état anoxique (juillet–septembre) et que le ^{210}Po particulaire décroît entre l'épilimnion oxygène et l'hypolimnion anoxique. Le ^{210}Po s'adsorberait sur les oxydes de manganèse et serait libéré lorsque le Mn(IV) est réduit en Mn(II). Le Po(IV) serait réduit à l'état de Po(II) soluble presque en même temps, car les potentiels redox des deux couples sont similaires, ce qui pourrait expliquer la diminution du ^{210}Po dans la phase particulaire anoxique (Benoit et Hemond, 1988). Balistrieri *et al.* (1995) quant à eux expliquent cette diminution par la précipitation dans les sédiments de sulfure de polonium en conditions anoxiques (Harada *et al.*, 1989 ; Swarzenski *et al.*, 1999). Enfin, Balistrieri *et al.* (1995) observent que 39 % du ^{210}Po est présent dans la phase « dissoute », c'est à dire filtrée à $0,45 \mu\text{m}$. Cependant, Lehto *et al.* (1999) retrouvent dans une eau filtrée à 5 kD, fraction considérée comme réellement dissoute, seulement 1 à 2 % du ^{210}Po , ce qui permet de supposer qu'une grande partie du ^{210}Po présent dans la phase filtrée à $0,45 \mu\text{m}$ est en fait associée à des petites particules ou à des colloïdes. Dans les eaux de forte salinité, la fraction de ^{210}Po dissoute est beaucoup plus importante, peut-être à cause d'une compétition entre le sodium et le polonium ou parce que les colloïdes sont défloculés (Carvalho, 1997 ; Lehto *et al.*, 1999).

Le transfert du ^{210}Po vers les végétaux et animaux dulçaquicoles est peu référencé. Les activités massiques et les facteurs de concentration relevés dans la littérature sont reportés dans le tableau VIII. Chez les poissons, classiquement, l'appareil digestif et les branchies ont une activité en ^{210}Po plus élevée que les muscles et les écailles (Hameed *et al.*, 1997 ; Shaheed *et al.*, 1997). L'activité du ^{210}Po et les facteurs de concentrations sont beaucoup plus importants pour les invertébrés que pour les poissons et le polonium se concentre surtout dans les tissus mous (Hameed *et al.*, 1997 ; Stepnowski et Skwarzec, 2000). En outre, les carapaces des crustacés (chitine) accumulent plus le ^{210}Po que les coquilles des bivalves (principalement constituées de carbonates de calcium), du fait de l'affinité du ^{210}Po pour la matière organique (Cherry et Heyraud, 1981).

Malgré des facteurs de concentration élevés, le faible niveau de contamination des eaux douces conduit à des concentrations minimales dans les poissons, même dans les zones sous l'influence directe d'un enrichissement en ^{210}Po (Clulow *et al.*, 1998 ; Haridasan *et al.*, 2001).

TABLEAU VIII
 ^{210}Po dans les plantes et les animaux d'eau douce.
 ^{210}Po in freshwater organisms.

Échantillons	^{210}Po Bq kg^{-1} frais sauf ^a	Facteur de concentration $\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$ frais	Référence ^b
plancton	18,9–28,6	20–25	Shaheed <i>et al.</i> , 1997
jacynthe d'eau <i>Eichhornia crassipes</i> (racines)	6,7–9,2	7–9	
végétal (racines)	31,3	22	Hameed <i>et al.</i> , 1997
mollusque bivalve <i>Anodonta cygnea</i> (tissus mous)	19,3 ^a	6	Stepnowski et Skwarzec, 2000
gastéropode (tissus mous)	32,5–46,2	33–42	Shaheed <i>et al.</i> , 1997 ; Hameed <i>et al.</i> , 1997
mollusque bivalve (tissus mous)	53,3–105,8	74–84	
mollusque bivalve (coquille)	1,2–4,5	0,9–5,3	
crustacé (muscle)	12,1–20,4	9–16	
crustacé (carapace)	8,6–16,6	8–12	
poisson (muscle)	1,9–27,2	2–19	Ladinskaya <i>et al.</i> , 1973
poisson : sandre et brème	0,36–0,43		
poisson (chair, viscères)	0,33–13,20	0,1–5	
poisson (arêtes)	0,37–0,43 ^a		Parfenov, 1974
poisson (muscle)	< 26 ^a		Clulow <i>et al.</i> , 1998
poisson (arêtes)	20–208 ^a		
poisson (contenu intestinal)	< 20–262 ^a		
poisson : valeur générique (muscle)		0,05 (0,01 à 0,5)	IAEA, 2001, 1994

^a $\text{Bq kg}^{-1} \text{sec}$; ^b Shaheed *et al.*, 1997 : rivière de Kaveri à Tiruchirappalli (Inde) ; Hameed *et al.*, 1997 : étang Mutharasanallur à Tiruchirappalli (Inde) ; Haridasan *et al.*, 2001 : rivière, à proximité d'une usine d'engrais, Cochin (Inde) ; Rostov (ex-URSS) ; lac Sasek Wielki (Pologne).

6. Conclusions

Le ^{210}Po est relativement peu étudié dans l'environnement terrestre ; en outre, les études sont souvent purement descriptives et basées sur des mesures *in situ* et rarement sur des expérimentations. Seules quelques études portant sur les minéraux des sols sont plus mécanistiques, mais restent ponctuelles. Cette revue met en évidence certaines lacunes. D'une part, les données génériques, utilisées par défaut pour l'évaluation de l'impact du polonium dans l'environnement ne reposent que sur peu de valeurs mesurées, voire différent notablement de résultats publiés par ailleurs. Il serait utile d'effectuer des essais en conditions contrôlées et de développer la connaissance des niveaux *in situ* afin de renseigner avec une

incertitude moindre les principaux paramètres nécessaires aux évaluations de transfert. D'autre part, de nouvelles perspectives de recherche sont à envisager : l'acquisition de données thermodynamiques concernant la spéciation et la complexation du ^{210}Po en solution paraît en être une étape essentielle. Par ailleurs, une meilleure connaissance (et une modélisation adaptée) des mécanismes de dépôt, de transfert foliaire et de remise en suspension du ^{210}Po semble intéressante du fait de sa voie dominante d'apport au sol puis de transfert à la chaîne alimentaire. Enfin, des expériences portant sur un écosystème simple, avec plusieurs maillons de la chaîne alimentaire contaminés individuellement ou globalement par du ^{210}Po , permettraient de mieux appréhender le comportement de cet élément et son impact global sur l'homme et l'environnement.

RÉFÉRENCES

- Al-Masri M.S., Al-Bich F. (2002) Polonium-210 distribution in Syrian phosphogypsum, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **251**(3), 431-435.
- Anand S.J.S., Rangarajan C. (1990) Studies on the activity ratios of ^{210}Po to ^{210}Pb and their dry-deposition velocities at Bombay in India, *J. Environ. Radioactiv.* **11**, 235-250.
- Athalye V.V., Ramachandran V., D'Souza T.J. (1995) Influence of chelating agents on plant uptake of ^{51}Cr , ^{210}Pb and ^{210}Po , *Environ. Pollut.* **89**(1-2), 47-53.
- Baes-III C., Sharp R., Sjoeren A., Shor R. (1984) *A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture*, ORNL-5786, Oak Ridge National Lab., Tenn. (USA).
- Balistrieri L.S., Murray J.W., Paul B. (1995) The geochemical cycling of stable Pb, ^{210}Pb , and ^{210}Po in seasonally anoxic Lake Sammamish, Washington, USA, *Geochim. Cosmochim. Ac.* **59**(23), 4845-4861.
- Baston G.M.N., Berry J.A., Brownsword M., Heath T.G., Ilett D.J., Mc Crohon A.E.A., Tweed C.J., Yui M. (1999) The sorption of Polonium, Actinium and Protactinium onto geological materials, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **556**, 1107-1114.
- Beasley T.M., Palmer H.E. (1966) ^{210}Pb and ^{210}Po in biological samples from Alaska, *Health Phys.* **152**, 1062-1064.
- Benedik L., Vrecek P. (2001) Determination of Pb-210 and Po-210 in environmental samples, *Acta Chim. Slov.* **48**(2), 199-213.
- Benoit G., Hemond H.F. (1988) *The biogeochemistry of ^{210}Pb and ^{210}Po in fresh waters and sediments*, Report 14-08-0001-G1132, Department of Civil Engineering, Cambridge, UK.
- Bradley E.J. (1993) *A review of natural levels of radioactivity and background radiation levels and a assessment of factors affecting these levels*, DoE/HMIP/RR/93/063, Department of Energy, USA, 78 p.
- Bunzl K., Kracke W. (1984) Distribution of ^{210}Pb and ^{210}Po , stable lead and fallout ^{137}Cs in soil plants and moorland sheep of a heath, *Sci. Tot. Environ.* **39**, 143-159.
- Bunzl K., Kracke W., Kreuzer W. (1979) ^{210}Pb and ^{210}Po in liver and kidneys of cattle-I. Animals from an area with little traffic or industry, *Health Phys.* **37**(3), 323-330.
- Carvalho F.P. (1990) *Contribution à l'étude du cycle du ^{210}Po et du ^{210}Pb dans l'environnement*, thèse UFR Sciences. Nice, Université de Nice Sophia Antipolis, 397 p.
- Carvalho F.P. (1995), ^{210}Pb and ^{210}Po in sediments and suspended matter in the Tagus estuary, Portugal. Local enhancement of natural levels by wastes from phosphate ore processing industry, *Sci. Tot. Environ.* **159**(2-3), 201-214.

- Carvalho F.P. (1997) Distribution, cycling and mean residence time of Ra-226, Pb-210 and Po-210 in the Tagus estuary, *Sci. Tot. Environ.* **196**(2), 151-161.
- Chen Q.J., Hou X.L., Dahlgard H., Nielsen S.P., Aarkrog A. (2001) A rapid method for the separation of Po-210 from Pb-210 by TIOA extraction, *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **249**(3), 587-593.
- Cherry R.D., Heyraud M. (1981) ^{210}Po content of marine shrimp: variation with biological and environmental factors, *Mar. Biol.* **65**, 165-175.
- Clayton R.F., Bradley E.J. (1995) A cost effective method for the determination of ^{210}Po and ^{210}Pb in environmental materials, *Sci. Tot. Environ.* **173-174**, 23-28.
- Clulow F.V., Dave N.K., Lim T.P., Avadhanula R. (1998) Radionuclides (lead-210, polonium-210, thorium-230, and -232) and thorium and uranium in water, sediments, and fish from lakes near the city of Elliot Lake, Ontario, Canada, *Environ. Pollut.* **99**(2), 199-213.
- Deneux-Mustin S., Roussel-Debet S., Mustin C., Henner P., Munier-Lamy C., Colle C., Berthelin J., Garnier-Laplace J., Leyval C. (2003) *Mobilité et transfert racinaire des éléments en traces : influence des micro-organismes du sol*. Tec & Doc, Lavoisier, Paris.
- D'Souza T.J., Mistry K.B. (1970) Comparative uptake of thorium-230, radium-226, lead-210 and polonium-210 by plants, *Radiat. Bot.* **10**, 293-295.
- Figgins P.E. (1961) *The radiochemistry of Polonium*, Nuclear Science series, US Atomic Energy Commission, Oak Ridge, Tennessee (USA).
- Flues M., Moraes V., Mazzilli B.P. (2002) The influence of a coal-fired power plant operation on radionuclide concentrations in soil, *J. Environ. Radioact.* **63**(3), 285-294.
- Francis C.W., Chesters G., Erhardt W.H. (1968) ^{210}Po entry into plants, *Environ. Sci. Technol.* **2**(9), 691-695.
- Gafvert T., Ellmark C., Holm E. (2002) Removal of radionuclides at a waterworks, *J. Environ. Radioact.* **63**(2), 105-115.
- Garcia-Orellana I., Garcia-Leon M. (2002) An easy method to determine Po-210 and Pb-210 by alpha spectrometry in marine environmental samples, *Appl. Radiat. Isotop.* **56** (4), 633-636.
- Globel B., Muth H. (1980) Natural radioactivity in drinking water, foodstuffs and man in Germany, in *Seminar on Radiological burden of man from natural radioactivity in the countries of the CEC*, Le Vesinet, Paris, France, 4-6 décembre 1979, CEC Luxembourg, p. 385.
- Green N., Hammond D.J., Davidson M.F., Wilkins B.T., Williams B. (2002) *The Radiological Impact of Naturally-Occurring Radionuclides in Foods from the Wild*, Rapport NRPB-W30 National Radiological Protection Board, Chilton, Oxon, United Kingdom.
- Hameed P.S., Shaheed K., Somasundaram S.S.N. (1997) A study on distribution of natural radionuclide polonium-210 in a pond ecosystem. *J. Biosci.* **22**(5), 627-634.
- Hansen W.R., Watters R.L. (1971) Unsupported ^{210}Po in soil: soil adsorption and characterization of soil solution species, *Soil Sci.* **112**, 145-155.
- Harada K., Burnett W.C., LaRock P. (1989) Polonium in Florida groundwater and its possible relationship to the sulfur cycle and bacteria, *Geochim. Cosmochim. Ac.* **53**, 143-150.
- Haridasan P.P., Paul A.C., Desai M.V.M. (2001) Natural radionuclides in the aquatic environment of a phosphogypsum disposal area, *J. Environ. Radioact.* **53**(2), 155-165.
- Hill C.R. (1962) Identification of α emitters in normal biological materials, *Health Phys.* **8**, 17-25.
- Hill C.R. (1965) Polonium-210 in man, *Nature* **208**(9), 423-428.
- Holtzman R.B., Urnezis P.W., Padova A., Bobula III C.M. (1979) *Contamination of the human food chain by uranium mill tailings piles*, Rapport NUREG/CR-0758-ANL/ES-69, Argonne National Institut, Argonne, USA.
- Houmani Z.M.M., Bradley D.A., Maah M.J., Ahmed Z. (2001) Concentration of Po-210, Ra-226 and Ac-228 in non-siliceous environmental materials, *Radiat. Phys. Chem.* **61**(3-6), 665-668.

- Hussain N., Church T.M., Veron A.J., Larson R.E. (1998) Radon daughter disequilibria and lead systematics in the western North Atlantic, *J. Geophys. Res. Atm.* **103**(D13), 16059-16071.
- IAEA (1994) *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in the Terrestrial and Freshwater Environment*, IAEA Technical Report series N° 364, International Atomic Energy Agency, Vienne.
- IAEA (2001) *Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment*, IAEA Safety Reports Series, N° 19, International Atomic Energy Agency, Vienne.
- Izak-Biran T., Schlesinger T., Weingarten R., Even O., Shamai Y., Israeli M. (1989) Concentrations of U and Po in animal feed supplements, in poultry meat and in eggs, *Health Phys.* **56**(3), 315-319.
- Jaworowski Z. (1969) Radioactive lead in the environment and in the human body, *At. Energy Rev.* **1**, 3-45.
- Jia G., Belli M., Blasi M., Marchetti A., Rosamilia S., Sansone U. (2000) ^{210}Pb and ^{210}Po determination in environmental samples, *Appl. Radiat. Isot.* **53**(1-2), 115-120.
- Karunakara N., Avadhani D.N., Mahesh H.M., Somashekarappa H.M., Narayana Y., Siddappa K. (2000) Distribution and enrichment of ^{210}Po in the environment of Kaiga in South India, *J. Environ. Radioact.* **51**(3), 349-362.
- Khandekar R.N. (1977) Polonium-210 in Bombay diet, *Health Phys.* **33**(2), 148-150.
- Kim G., Hussain N., Church T.M. (2000) Excess ^{210}Po in the coastal atmosphere, *Tellus B* **52**(1), 74-80.
- Ladinskaya L.A., Parfenov Y.D., Popov D.K., Fedorova A.V. (1973) ^{210}Pb and ^{210}Po content in air, water, foodstuffs, and the human body, *Arch. Environ. Health* **27**(4), 254-258.
- Lapham S.C., Millard J.B., Samet J.M. (1989) Health implications of radionuclide levels in cattle raised near U mining and milling facilities in Ambrosia Lake, New Mexico, *Health Phys.* **56**(3), 327-340.
- LaRock P., Hyun J.H., Boutelle S., Burnett W.C., Hull C.D. (1996) Bacterial mobilization of polonium, *Geochim. Cosmochim. Ac.* **60**(22), 4321-4328.
- Lehto J., Kelokaski P., Vaaramaa K., Jaakkola T. (1999) Soluble and particle-bound Po-210 and Pb-210 in groundwaters, *Radiochim. Acta* **85**(3-4), 149-155.
- Lide D.R. (Ed.) (1999) *Handbook of chemistry and physics*, 79th edn. Chemical Rubber Company CRC press, Florida, USA.
- Magill J. (2003) *Nuclides.net. An Integrated Environment for Computations on Radionuclides and their Radiation*. Springer Verlag.
- Marenco A., Fontan J. (1972) Sources of ^{210}Po within the troposphere, *Tellus B* **24**(1), 38-46.
- Martin P. (2003) Uranium and thorium series radionuclides in rainwater over several tropical storms, *J. Environ. Radioact.* **65**, 1-18.
- Martinez-Aguirre A., Garcia-Leon M. (1996) Transfer of natural radionuclides from soils to plants in a wet Marshland, *Appl. Radiat. Isot.* **47**(9/10), 1103-1108.
- McCubbin D., Leonard K.S., Maher B.A., Hamilton E.I. (2000), Association of ^{210}Po (^{210}Pb), $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am with different mineral fractions of a beach sand at Seascale, Cumbria, UK, *Sci. Tot. Environ.* **254**(1), 1-15.
- Miura T., Hayano K., Nakayama K. (1999) Determination of Pb-210 and Po-210 in environmental samples by alpha ray spectrometry using an extraction chromatographic resin, *Anal. Sci.* **15**(1), 23-28.
- Momoshima N., Song L.-X., Osaki S., Maeda Y. (2002) Biologically induced Po emission from fresh water, *J. Environ. Radioact.* **63**(2), 187-197.
- Moore H.E., Martell E.A., Poet S.E. (1976) Sources of ^{210}Po in the atmosphere, *Environ. Sci. Technol.* **10**(6), 586-591.

- Nho E.-Y., Ardouin B., Le Cloarec M.F., Ramonet M. (1996) Origins of ^{210}Po in the atmosphere at Lamto, Ivory Coast: biomass burning and Saharan dusts, *Atm. Environ.* **30**(22), 3705-3714.
- Nho-Kim E.Y. (1996) *Le polonium-210 dans les aérosols : contribution à l'étude des feux de savanes et des émissions volcaniques*, thèse Terre, Océan, Espace, Paris-VII Jussieu, Paris.
- Parfenov Y. (1974) Polonium-210 in the environment and in the human organism, *At. Energy Rev.* **12**(1), 75-143.
- Pietrzak-Flis Z., Skowronska-Smolak M. (1995) Transfer of ^{210}Pb and ^{210}Po to plants via root system and above-ground interception, *Sci. Tot. Environ.* **162**(2-3), 139-147.
- Pradel J., Zettwoog P., Deller N., Beutier D. (2001) Le polonium 210, un repère naturel important en radioprotection, *Radioprotection* **36**(4), 401-416.
- Rencova J., Svoboda V., Holusa R., Volf V., Jones M.M., Singh P.K. (1997) Reduction of subacute lethal radiotoxicity of polonium-210 in rats by chelating agents, *Int. J. Radiat. Biol.* **72**(3), 341-348.
- Rosner G., Bunzl K., Hotzl H., Winkler R. (1984) Low level measurements of natural radionuclides in soil samples around a coal-fired power plant, *Nucl. Instrum. Meth.* **223**(2-3), 585-589.
- Sabroux J.C. (1998) Le radon, traceur de phénomènes naturels, in *Le radon de l'environnement à l'homme* (H. Mettievier, M.C. Robé, Eds.), pp. 31-49. EDP Sciences, Les Ulis, France.
- Santos P.L., Gouvea R.C., Dutta I.R., Gouvea V.A. (1990) Accumulation of ^{210}Po in foodstuffs cultivated in farms around the Brazilian mining and milling facilities on Poços de Caldas plateau, *J. Environ. Radioact.* **11**, 141-149.
- Schüttelkopf H., Kiefer H. (1981) The Ra-226, Pb-210 and Po-210 contamination of the Black Forest, in *Natural radiation environment, Proceedings of the second symposium on natural radiation environment*, January 19-23, 1981, Bombay, India (Vohra K., Mishra V., Pillai K., Sadaswan S., Eds.), John Wiley and Sons, New York.
- Shaheed K., Somasundaram S.S.N., Hameed P.S., Iyengar M.A.R. (1997) A study of polonium-210 distribution aspects in the riverine ecosystem of Kaveri, Tiruchirappalli, India, *Environ. Pollut.* **95**(3), 371-377.
- Siddappa K., Balakrishna K.M., Radhakrishna A.P., Somashekarappa H.M., Narayana Y. (1994) *Distribution of natural and artificial radioactivity components in the environs of coastal Karnataka, Kaiga and Goa (1991-94)*, Final Project Report to BRNS, DAE, Mangalore University, Mangalore, India.
- Simmonds J.R., Lawson G., Mayall A. (1995) *Methodology for assessing the radiological consequences of routine releases of radionuclides to the environment*, Report EUR 15760, Radiation Protection N° 72, National Radiological Protection Board, Chilton, UK.
- Singh D.R., Nilekani S.R. (1976) Measurement of polonium activity in Indian Tobacco, *Health Phys.* **31**(4), 393-394.
- Skwarzec B. (1997) Radiochemical methods for the determination of polonium, radiolead, uranium and plutonium in environmental samples, *Chem. Anal. Warsaw* **42**(1), 107-115.
- Skwarzec B., Struminska D.I., Ulatowski J., Golebiowski M. (2001a) Determination and distribution of Po-210 in tobacco plants from Poland, *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **250**(2), 319-322.
- Skwarzec B., Struminska D.I., Borylo A. (2001b) The radionuclides U-234, U-238 and Po-210 in drinking water in Gdansk agglomeration (Poland), *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **250**(2), 315-318.
- Smith-Briggs J.L. (1984) Natural radionuclides near a coal-fired power station, *Nucl. Instrum. Meth.* **223**, 590-592.
- Smith-Briggs J.L., Bradley E.J. (1984) Measurement of natural radionuclides in U.K. diet, *Sci. Tot. Environ.* **35**(3), 431-440.
- Smith-Briggs J.L., Bradley E.J., Potter M.D. (1986) The ratio of lead-210 to polonium-210 in U.K. diet, *Sci. Tot. Environ.* **54**, 127-133.

- Stannard J.N., Casarett G.W. (Eds.) (1964) *Metabolism and biological effect of an Alpha emitter polonium-210*. Radiation Research, Academic Press, New York and London, 442 p.
- Stepnowski P., Skwarzec B. (2000) Tissue and subcellular distributions of Po-210 in the crustacean *Saduria entomon* inhabiting the southern Baltic Sea, *J. Environ. Radioact.* **49**(2), 195-199.
- Swarzenski P.W., McKee B.A., Sorensen K., Todd J.F. (1999) Pb-210 and Po-210, manganese and iron cycling across the O₂/H₂S interface of a permanently anoxic fjord: Framvaren, Norway, *Mar. Chem.* **67**(3-4), 199-217.
- Thibault D.H., Sheppard M.I., Smith P.A. (1990) A critical compilation and review of default soil solid/liquid partition coefficients, K_d, for use in environmental assessments. Energie atomique du Canada limitée, Pinawata, Canada.
- Thomas P.A. (1994) Dosimetry of ²¹⁰Po in humans, caribou, and wolves in northern Canada, *Health Phys.* **66**(6), 678-690.
- Thomas P.A. (1995) *Radionuclides in small mammals of the Saskatchewan prairie – including implications for the boreal forest and arctic tundra*. Regina, Saskatchewan, Environment Canada.
- Thomas P.A. (2000) Radionuclides in the terrestrial ecosystem near a Canadian uranium mill: Parts I, II et III, *Health Phys.* **78**(6), 614-640.
- Thomas P.A., Gates T.E. (1999) Radionuclides in the Lichen-Caribou-Human Food Chain Near Uranium Mining Operations in Northern Saskatchewan, Canada, *Environ. Health Persp.* **107**(7), 527-537.
- Thomas P.A., Sheard J.W., Swanson S. (1994) Transfer of ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb through the lichen-caribou-wolf food chain of northern Canada, *Health Phys.* **66**(6), 666-677.
- Torvik E., Pfitzer E., Kereiakes J.G., Blanchard R. (1974) Long term effective half-lives for lead-210 and polonium-210 in selected organs of the male rat, *Health Phys.* **26**(1), 81-87.
- Tso T.C., Harley N., Alexander L.T. (1966) Source of lead-210 and polonium-210 in tobacco, *Science* **153**(738), 880-882.
- Ulrich H.J., Degueudre C. (1993) The sorption of ²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi and ²¹⁰Po on Montmorillonite: A study with emphasis on reversibility aspects and on the effect of radioactive decay of adsorbed nuclides, *Radiochim. Acta* **62**, 81-90.
- UNSCEAR (2000) Sources and Effects of Ionizing Radiation, Volume I: Sources, *Annex B : Exposures from natural radiation sources*, Vienne, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, pp. 84-141.
- USAEC (1980) *Po-210 in soils and plants*, United States Atomic Energy Commission Special Report, Volume 11, p. 1733.
- Vaaramaa K., Lehto J., Jaakkola T. (2000) Removal of U-234, U-238, Ra-226, Po-210 and Pb-210 from drinking water by ion exchange, *Radiochim. Acta* **88**(6), 361-367.
- van Muyler J. (1966) Polonium, In *Atlas of Electrochemical Equilibria*, Pourbaix M. (Ed.), pp. 572-576. Pergamon press.
- Watters R.L., Hansen W.R. (1970) The hazards implication of the transfer of unsupported ²¹⁰Po from alkaline soil to plants, *Health Phys.* **18**(4), 409-413.
- Winkler R., Hotzl H., Chatterjee B. (1981) Analysis of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po concentrations in surface air by an alpha spectrometric method, *Health Phys.* **41**(3), 495-503.