NOUVELLES ÉTUDES DE CONTAMINATIONS EXPÉRIMENTALES D'ESPÈCES MARINES PAR LE CÉSIMUM ¹³⁷, LE RUTHÉNIUM ¹⁰⁶ ET LE CÉRIUM ¹⁴⁴

J. ANCELLIN et A. VILQUIN *

Manuscrit reçu le 25 Avril 1968

RÉSUMÉ

Des contaminations expérimentales d'espèces marines par des produits de fission ont été réalisées au Laboratoire de Radioécologie marine, C.E.A., Département de la Protection Sanitaire. Ces recherches destinées à apporter une contribution aux données permettant de situer les niveaux maximaux admissibles des rejets radioactifs en mer reposent sur la notion de « facteur de concentration » exprimant la capacité plus ou moins marquée des organismes à concentrer les radioéléments de provenances diverses présents dans le milieu marin.

Les contaminations en aquariums, effectuées avec trois produits de fission : Césium ¹³⁷, Ruthénium ¹⁰⁶ et Cérium ¹⁴⁴ ont surtout porté sur des espèces d'algues et d'invertébrés communs dans la région du nord-ouest du Cotentin.

Elles ont permis de déterminer un certain nombre de facteurs de concentration qui ont été comparés aux résultats expérimentaux obtenus dans d'autres laboratoires et aux valeurs provenant de mesures faites dans le milieu naturel soumis à l'influence de rejets radioactifs.

INTRODUCTION

Ce travail se rapporte à une série d'expériences réalisées au Laboratoire de Radioécologie Marine, dépendant du Département de la Protection Sanitaire, et annexé au Centre de la Hague; il fait suite aux premières recherches effectuées en 1963-1964, objet de publications antérieures [2, 3, 4].

La présence dans le milieu marin de produits de fission de provenances diverses pose, comme on le sait, un certain nombre de problèmes du point de vue de l'hygiène et du contrôle sanitaire : ces éléments radioactifs peuvent, en effet, à la faveur de différents transferts et du métabolisme propre aux êtres vivants, être concentrés à nouveau, soit au niveau du sédiment, soit par différentes espèces dont certaines à leur tour sont utilisées directement ou indirectement par l'homme.

De tels phénomènes de reconcentration sont variables selon les radioéléments et les espèces. En ce qui concerne ces dernières notre étude, comme les précé-

(*) Groupe de Radioécologie Marine, C.E.A./D.P.S., Centre de La Hague, B.P. n° 209 à Cherbourg (50).

dentes, s'applique à un certain nombre de celles qui sont caractéristiques du littoral du Cotentin.

Nos recherches que motivait la protection sanitaire doivent surtout être considérées comme une contribution aux données permettant de situer les niveaux maximaux admissibles de rejets radioactifs en mer.

I - CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

Afin d'essayer de diversifier les processus de transfert des radioéléments au niveau des organismes marins et surtout afin de nous rapprocher des conditions mêmes d'une contamination par un effluent réel nous avons été amenés à employer, en plus de ceux déjà décrits, d'autres types de contaminants : il s'agit notamment de mélanges de radioéléments, d'extraits d'effluents réels et enfin de formes complexes de radoruthénium.

Les expériences sont effectuées dans une salle climatisée à 14°-18°, éclairée par la lumière du jour. Les propriétés de l'eau de mer (introduite non filtrée dans les aquariums) sont proches de celles déjà précisées [2, 4]. Les niveaux de contamination des aquariums, d'une contenance de 40 à 70 litres, sont de l'ordre de 1 à 2 microcuries par litre, et les espèces ne sont mises dans les aquariums que lorsque l'activité spécifique de l'eau, après une chute initiale, demeure sensiblement constante.

Chaque aquarium est pourvu d'un système de filtration autonome (micro-filtre « Nept »).

Les aliments ajoutés en cours d'expérience (à raison d'une fois par semaine) ne sont pas contaminés.

La durée de chaque expérience est de l'ordre de 4 à 6 mois en moyenne. Etant donné que les échantillons d'étude sont souvent en nombre limité dans chaque aquarium, et qu'on doit les sacrifier pour en mesurer la radioactivité, il convient d'espacer les prélèvements de manière à avoir un aperçu de la dynamique de la contamination au cours du temps.

Un échantillon est prélevé pour chaque mesure; les écarts individuels inhérents à cette méthode sont en partie compensés par le fait qu'au total, dans les quatre séries d'expériences (cf. le présent compte rendu et [2, 3, 4]) plusieurs aquariums ont été mis en service dans des conditions voisines ou même identiques de contamination et de peuplement en espèces : ceci ayant essentiellement pour but de s'assurer de la reproductibilité des résultats. Beaucoup de valeurs reposent sur la moyenne de 3 ou 4 expériences distinctes et parfois plus.

II - CONDITIONS ET MODE D'EXPRESSION DES MESURES

Les mesures ont été faites en comptage gamma.

Tous les échantillons sont introduits pour le comptage dans des tubes en matière plastique du calibre du puits standard du scintillateur.

En ce qui concerne les échantillons provenant d'un aquarium contaminé avec un seul radioélément (aquariums 5, 6, 7, 8, 11 et 74 à 79 inclus) les mesures ont été effectuées avec un détecteur à scintillations 1 inch $3/4 \times 2$ inches, à puits

standard, suivi d'une échelle monocal. Le comptage est pratiqué dans une bande de 10 volts (correspondant à une bande d'énergie de 150 keV environ), pendant 30 minutes en général.

En ce qui concerne les polycontaminations (aquariums 80, 84 et 85) les mesures ont été faites au sélecteur SA 40 B, muni d'une sonde S 25 A, à scintillateur 1 inch $\frac{3}{4}$ $\times$ 2 inches, à puits standard. La durée des comptages des échantillons biologiques est de 20 minutes, celle des échantillons d'eau (2 cm³) de 10 heures. Les données sont dépouillées au calculateur à bande magnétique RG 23 par annulations successives des pics du spectre.

Lorsque les résultats sont présentés sous forme de facteurs de concentration, ces derniers indiquent, rappelons-le, la valeur du rapport :

$$\frac{\text{activité spécifique de l'espèce exprimée en : impulsions/mn/g. poids humide}}{\text{activité spécifique du milieu, eau de mer, exprimée en : impulsions/mn/g.}}$$

Soulignons qu'il s'agit du facteur de concentration correspondant au poids humide de l'échantillon - ce mode d'expression étant couramment employé en radioécologie marine [33] et présentant, entre autres avantages, celui de fournir, tant du point de vue sanitaire que sur le plan biologique, une notion chiffrée, directe, du phénomène de concentration d'un élément du milieu par un organisme vivant.

III - MARGES DE FLUCTUATION DES RÉSULTATS

III.1. - FACTEURS DE CONCENTRATION

Nos données chiffrées (tableau I) se rapportent à la période d'équilibre entre l'activité du milieu et celle des espèces; elles expriment d'autre part, en général, le facteur de concentration maximum constaté au cours de cette période où l'on enregistre toujours des fluctuations, facteur de concentration qui correspond au maximum d'écart entre la courbe d'activité de l'eau et celle de l'espèce considérée. Nous avons représenté (fig. 1 à 6) quelques-unes des courbes les plus significatives.

L'allure de plusieurs courbes (notamment aquariums 75, 84 et 85) permet d'ailleurs de penser que l'équilibre n'est pas toujours atteint, même après une durée de plusieurs mois : mais ces irrégularités ne doivent pas masquer l'aspect général du phénomène de contamination sur lequel nous nous sommes basés pour l'appréciation d'un facteur de concentration et comportant une phase de début rapide, puis l'apparition d'un plateau relativement constant.

On doit tenir compte, dans l'interprétation des courbes, de la décroissance radioactive intervenant, en ce qui concerne le ruthénium 106 et le cérium 144 (période de l'ordre de 1 an), au cours d'expériences d'une durée de 200 jours ou plus et qui se manifeste par une diminution progressive de l'activité de l'eau. Il arrive cependant que ce phénomène soit plus ou moins perturbé du fait des propriétés physico-chimiques de certains radioéléments : une partie de ceux-ci, d'abord non disponible dans la première phase de contamination, peut se trouver parfois mise ensuite en circulation dans l'eau des aquariums. C'est du moins ce que des recherches récentes ont paru montrer en ce qui concerne le ruthénium [16].

Certaines valeurs isolées ou en nombre insuffisant, n'ayant pas permis de tracer des courbes, ont été cependant reportées dans le tableau I et sont accompagnées de l'indication, entre parenthèses, du nombre de jours sur lesquels a porté l'expérience; plusieurs de ces valeurs peuvent ne pas correspondre à l'état d'équilibre.

III.2. - ANALYSE STATISTIQUE

III.2.1. *Ecart s individuels*

Ainsi que nous l'avons mentionné beaucoup de valeurs reposent sur la moyenne d'une série d'expériences distinctes qui ont permis de s'assurer de la reproductibilité des résultats. Il est important par ailleurs d'avoir un aperçu concernant les écarts individuels de contamination, pour une même espèce et dans un même aquarium; les chiffres suivants, extraits de travaux en cours au Laboratoire de La Hague [26], se rapportent au comptage (nombre d'impulsions par minute et par gramme) de lots de crevettes (*Leander*) contaminées avec du ruthénium 106. Chaque lot provient d'un même aquarium et a été compté le même jour et dans les mêmes conditions :

<i>Lot n° 1 : crevette n° 1 : 207</i>	<i>Lot n° 3 : crevette n° 1 : 208</i>
— n° 2 : 230	— n° 2 : 168
— n° 3 : 219	— n° 3 : 205
— n° 4 : 241	— n° 4 : 241
<i>Lot n° 2 : crevette n° 1 : 204</i>	<i>Lot n° 4 : crevette n° 1 : 168</i>
— n° 2 : 151	— n° 2 : 224
— n° 3 : 170	— n° 3 : 241
— n° 4 : 232	— n° 4 : 216

Voici, d'autre part, les écarts individuels observés dans le cas de contaminations par le cérium 144 pour la même espèce :

<i>Lot n° 1 : crevette n° 1 : 1 059</i>	<i>Lot n° 3 : crevette n° 1 : 1 536</i>
— n° 2 : 1 925	— n° 2 : 731
— n° 3 : 1 225	— n° 3 : 1 118
	— n° 4 : 1 028
<i>Lot n° 2 : crevette n° 1 : 1 017</i>	<i>Lot n° 4 : crevette n° 1 : 917</i>
— n° 2 : 1 325	— n° 2 : 790
— n° 3 : 797	— n° 3 : 752
— n° 4 : 1 471	— n° 4 : 1 692

On voit que les différences individuelles sont, d'après ces résultats, moins prononcées dans le cas des contaminations au ruthénium 106 que dans celles au cérium 144 : on observe pour ces dernières des variations allant du simple au double.

III.2.2. *Erreur statistique*

L'erreur statistique portant sur le nombre d'impulsions enregistrées a été calculée lorsque cela était possible.

Elle présente les ordres de grandeur suivants — en faisant intervenir deux fois l'écart-type ($\pm 2 \sigma$) :

ruthénium 106

— échantillons d'eau : $\pm 8-10 \%$,

— échantillons biologiques : $\pm 1-3 \%$,

erreur résultant sur les facteurs de concentration : $\pm 10 \%$ env.

césium 137

— échantillons d'eau : $\pm 5-9 \%$,

— échantillons biologiques : $\pm 1-7 \%$,

erreur résultant sur les facteurs de concentration : $\pm 7-12 \%$.

Lorsque les résultats donnent lieu à une lecture par annulations successives des pics du spectre, on peut estimer que la somme de l'erreur d'appréciation faite à la lecture et de l'erreur statistique entraîne une approximation du facteur de concentration à $\pm 20-30 \%$ dans les cas les plus défavorables.

IV - CÉSIUM 137

Les précédentes expériences de contamination par le césium 137 [2, 3] ont été limitées à trois espèces de crustacés : *Leander serratus*, *Balanus balanoides* et *Balanus crenatus*, et à une forme chimique simple du contaminant : le sulfate de césium 137.

Les recherches complémentaires qui font l'objet du présent rapport s'appliquent à une série d'autres espèces marines et ont trait à divers types de contaminations réalisées à partir de sulfate de césium 137 (seul ou entrant dans la composition d'un mélange de radioéléments) et de radiocésium entrant dans la composition d'un effluent.

On trouvera dans le tableau I et les figures 1 et 2 les données chiffrées et les courbes se rapportant à ces expériences.

IV.1. - SULFATE DE CÉSIUM 137 SEUL

Les contaminations (aquariums 5, 6, 7, 8, 11, 74 et 75) ont porté sur une algue verte : *Ulva lactuca*, une algue brune : *Fucus serratus*, trois algues rouges : *Rhodymenia palmata*, *Corallina officinalis* et *Chondrus crispus* (lichen carragaheen), diverses espèces d'invertébrés : les anémones de mer : *Anemonia sulcata* et *Actinia equina*, un mollusque : *Chlamys opercularis* (vanneau), un crustacé : *Leander serratus* (crevette rose), un échinoderme : *Asterina gibbosa*, une ascidie : *Dendrodoa grossularia*, et enfin, en ce qui concerne les vertébrés, sur une espèce de poisson : *Blennius pholis* (blennie).

D'après ces expériences nous constatons (tableau I) que pour l'ensemble des trois catégories d'organismes, les facteurs de concentration ne dépassent pas 40.

Une bonne concordance est observée, en ce qui concerne l'espèce *Leander serratus*, entre les résultats de cette série d'expériences et les précédents [2] les facteurs de concentration étant compris entre 20 et 35. C'est également un facteur

de concentration de 19 à 28 que nous avons trouvé pour la chair des deux espèces de crustacés fixés étudiées auparavant : *Balanus balanoides* et *Balanus crenatus* [3].

Les facteurs de concentration pour les algues ne présentent pas de différences vraiment significatives par rapport à ceux des invertébrés en général (10 à 20 pour les deux ensembles). On note, en ce qui concerne les mollusques, une concentration sensiblement plus élevée pour la chair que pour la coquille; nous aurons l'occasion de revenir sur ce point qui paraît d'ailleurs en accord avec ce que l'on a observé sur le métabolisme du césium et la fixation de ce corps au niveau du tissu musculaire — à rapprocher des propriétés du potassium —. La même remarque vaut pour quelques autres expériences conduites en même temps et uniquement sur des mollusques comestibles (moule, huître, praire) et qui ont montré là encore une contamination plus marquée pour la chair que pour la coquille [25].

IV.2. - CÉSIUM 137 ENTRANT DANS LA COMPOSITION D'UN MÉLANGE DE RADIOÉLÉMENTS

Dans le but de nous rapprocher des conditions de contamination d'un effluent réel nous avons réalisé (aquarium 80) une contamination à partir d'un mélange de radionucléides préparé au laboratoire.

La composition du mélange introduit dans l'aquarium était la suivante :

- 80 microcuries de nitrato nitrosyl ruthénium 106 en milieu HNO_3 8-10 N (préparation RKS-1 Amersham),
- 80 microcuries de chlorure de cérium 144,
- 80 microcuries de sulfate de césium 137.

Les principales espèces sur lesquelles a porté l'expérience ont été *Chondrus crispus*, *Corallina officinalis*, *Anemonia sulcata*, *Cardium edule* (coque), *Mytilus edulis* (moule), *Dendrodoa grossularia*.

Aucune différence notable (tableau I) n'apparaît dans les facteurs de concentration par rapport aux résultats obtenus avec le sulfate de césium seul, aussi bien pour les algues que pour les invertébrés. On note ici encore que les coquilles de mollusques sont très peu contaminées par rapport à la chair.

IV.3. - RADIOCÉSIUM ENTRANT DANS LA COMPOSITION D'UN EFFLUENT

Le Centre de Marcoule a pu préparer, à l'intention du Laboratoire de Radioécologie Marine, un produit contaminant obtenu à partir d'un effluent concentré sur lequel a été effectué au moyen de $\text{Ca}(\text{OH})_2$ et CO_3Na_2 , un traitement se rapprochant d'un de ceux d'une station de traitement d'effluents.

La composition de ce contaminant (activité spécifique : 15 microcuries par cm^3) était la suivante :

- Césium : 51 % (^{134}Cs et ^{137}Cs)
- Ruthénium : 42 % (^{103}Ru et ^{106}Ru)
- Strontium : 7 % (^{89}Sr et ^{90}Sr),
- NO_3Na : 200 000 p.p.m.
- CO_3Na_2 : 2 000 p.p.m.

L'expérience (aquariums 84 et 85) a porté sur : *Chondrus crispus*, *Corallina officinalis*, *Actinia equina*, *Anemonia sulcata*, *Mytilus edulis* et *Blennius pholis*.

Nous observons ici encore (tableau I) une bonne concordance d'ordres de grandeurs entre les facteurs de concentration obtenus à la suite de ces contaminations et ceux précédemment mentionnés : dans le cas présent les valeurs ne dépassent pas 20 (algues, invertébrés, poisson); notons que pour les coquilles des mollusques une certaine contamination, bien que toujours sensiblement plus faible que pour la chair, se manifeste parfois : il peut s'agir d'une rétention de radioéléments au niveau de la faune et de la flore associées à la coquille et plus ou moins importantes selon les individus.

IV.4. - RÉSULTATS D'ENSEMBLE DES CONTAMINATIONS PAR LE RADIOCÉSIMUM

Quels que soient les organismes étudiés — algues, invertébrés, poisson — les facteurs de concentration ne dépassent pas 40. La valeur moyenne pour les algues et les invertébrés, à l'exception des crevettes roses (*Leander serratus*), est de l'ordre de 10-20. Les concentrations les plus élevées, de l'ordre de 20-30, sont observées pour la crevette rose et la blennie (poisson); ceci peut être en rapport avec un phénomène de concentration plus marquée du césium (métabolisme analogue à celui du potassium) au niveau du tissu musculaire qui est relativement important chez ces deux espèces.

De même chez les mollusques la chair présente un pouvoir d'accumulation sensiblement plus élevé que la coquille.

On constate une bonne concordance dans l'ordre de grandeur des résultats et il ne semble pas y avoir de différences significatives selon qu'il s'agit — pour une même espèce — de contaminations par le radiocésium isolé ou en mélange avec d'autres radioéléments, ou provenant d'un effluent.

IV.5. - COMPARAISONS AVEC D'AUTRES DONNÉES - DISCUSSION

IV.5.1. *Algues*

Des valeurs de facteurs de concentration de 1 à 100 pour les algues marines sont données par J. MAUCHLINE et W.L. TEMPLETON [29] (références diverses).

Parmi les valeurs qui proviennent de mesures effectuées sur un littoral contaminé par des rejets on peut citer celle de MAUCHLINE [27, 28] pour les algues brunes en général : 70 et celle de TEMPLETON [36] pour *Fucus serratus* : 53.

Des résultats provenant de contaminations expérimentales (césium 134) ont été publiés par HIYAMA [19] : *Monostroma* (algue verte) : 1,2, *Scytosiphon lomentarius* (algue brune) : 2,0; par POLIKARPOV [31, 32, 33] (césium 137) : algues vertes et rouges : 4-10, algues brunes : 30, *Ulva rigida* : 4, *Cystoseira barbata* : 27, *Phyllophora rubens* : 10. A ces valeurs peuvent s'ajouter celles de TEMPLETON [35] pour *Porphyra umbilicalis* : 50, ainsi que celles de GUTKNECHT [17] : *Ulva lactuca* : 7, *Fucus vesiculosus* : 30, *Dictyota dichotoma* : 10, *Porphyra umbilicalis* : 5, *Chondrus crispus* : 30.

Si l'on enregistre parfois des variations assez notables, par exemple pour *Porphyra umbilicalis* : 5 et 50, aucune de ces valeurs ne dépasse 100. On peut admettre d'autre part qu'elles sont dans l'ensemble voisines de celles que nous

avons trouvées d'après nos propres expériences et qui se situent entre 10 et 20 en moyenne.

Ces comparaisons n'appellent pas de remarques spéciales si l'on s'en tient à l'expression globale des résultats. Une étude plus détaillée devrait nécessairement tenir compte de certains aspects que nous n'avons pas abordés; rappelons seulement à titre d'indication, d'après les auteurs que nous venons de citer, que le césium se fixerait aussi bien sur les cellules mortes que sur les cellules vivantes (POLIKARPOV), que la lumière — par l'intermédiaire ou non de la photosynthèse — favoriserait l'accumulation (SCOTT, GUTKNECHT), de même que cette dernière serait plus importante au niveau des espèces (animales ou végétales) vivant dans une eau de mer appauvrie en potassium (SCOTT, BRYAN).

IV.5.2. Invertébrés

Pour les invertébrés en général les valeurs indiquées par MAUCLINE et TEMPLETON [29] sont de 10-100.

Les facteurs de concentration provenant de mesures faites en milieu contaminé par des rejets, d'après l'étude de MAUCLINE [27], sont de l'ordre de 150.

Sur le plan de la contamination expérimentale d'assez nombreuses espèces ont d'autre part été étudiées. On peut extraire notamment les valeurs suivantes des travaux :

a) de BRYAN [6 à 10] :

Cnidaires : *Actinia equina* : 5-9, *Tealia felina* : 4-8, *Metridium senile* : 10-11; vers : *Nereis diversicolor* : 6,3; mollusques : *Mytilus sp.*, animal entier : 2 environ, coquille : très faible, pied : 12 environ, muscle adducteur : 7-8; crustacés : *Homarus vulgaris* : 8, *Leander serratus* : 25 et pour trois espèces de crabes :

	Animal entier	muscle
<i>Portunus puber</i>	6,6	13,1
<i>Carcinus manas</i>	8,5	17,7
<i>Cancer pagurus</i>	6,0	11,3

ascidie : *Ciona sp.*, animal entier : 1,2 environ. (Certains de ces résultats concernent le césium 134).

b) de HIYAMA [19]

Mollusques : *Venerupis philippinarum*, muscle adducteur : 8,6, *Meretrix chione*, muscle adducteur : 8,6; crustacés : *Leander sp.*, tissus mous : 15, exosquelette : 15.

c) de POLIKARPOV [32, 33]

Valeur moyenne pour trois espèces de crustacés (*Pachygrapsus marmoratus*, *Carcinus manas*, *Leander squilla*) : 10. *Mytilus galloprovincialis*, animal entier : 3, coquille : 0, tissus mous : 10.

On constate qu'il existe, à l'intérieur d'un même ensemble zoologique (crustacés, mollusques, etc...) une assez bonne homogénéité entre les divers résultats de contaminations d'organes ou d'animaux entiers. Les crevettes atteignent d'une façon générale des valeurs légèrement plus élevées (facteurs de concentration de l'ordre de 20) par rapport aux autres invertébrés (voir également les valeurs de CHIPMAN [12], pour *Palaemonetes pugio*, f.c. 25); d'autre part une diffé-

rence très accusée est constatée chez les mollusques entre le pouvoir d'accumulation de la chair et de la coquille — cette dernière ne fixant que très peu le radio-césium.

Si l'on se reporte à nos propres valeurs (tableau I) il apparaît qu'aucune différence notable n'est à enregistrer par rapport à celles que nous venons de mentionner : nous avons, dans l'ensemble, retrouvé pour différents groupes d'invertébrés des ordres de grandeur qui présentent une constance assez remarquable, en dépit des différences qui ne manquent pas de se produire dans les conditions expérimentales.

Des comparaisons sont à rechercher avec ce qui se passe dans le cas de contaminations d'espèces d'eau douce appartenant à des groupes également représentés en mer.

On sait (travaux de BRYAN, en particulier) que l'accumulation de césium par les organismes est dans une certaine mesure fonction des caractéristiques chimiques du milieu ambiant (accumulation plus importante en milieu appauvri en potassium, *cf. supra*). Nous pouvons donc nous attendre à des contaminations plus importantes en milieu d'eau douce qu'en milieu marin — ce que confirment les récents travaux de FOULQUIER, BOVARD et GRAUBY [14] sur un bivalve d'eau douce : *Margaritana margaritifera* et dont les facteurs de concentration (par rapport à l'échantillon pesé humide) apparaissent comme étant supérieurs d'un facteur 5 à 10 par rapport aux valeurs que nous avons relevées pour les bivalves marins.

Ces faits sont d'ailleurs à rapprocher de ce que constate FONTAINE [13] au sujet de la fixation de produits de fission chez les téléostéens marins et les téléostéens d'eau douce.

IV.5.3. Vertébrés

Les valeurs trouvées dans la littérature se rapportent à quelques espèces de poissons; les chiffres suivants, entre autres, sont indiqués par CHIPMAN [11], [12] : *Leistomus xanthurus* (muscles) : 23, *Paralichthys dentatus* : 10 environ; par TEMPLETON [35] : *Pleuronectes platessa*, poisson entier : 6, muscle : 7. Des valeurs par organes sont fournies par HIYAMA [19] pour l'espèce *Acanthogobius flavimanus* : tractus digestif : 12, peau : 2,8, vertèbres : 3,5, muscle : 25 (*).

Plusieurs de ces données offrent une certaine similitude avec celles que nous avons recueillies sur la seule espèce étudiée — la blennie — notamment en ce qui concerne la contamination de la chair (*cf. nos* facteurs de concentration : 15 à 35), relativement accentuée, rappelons-le, par rapport à celle des autres organismes ayant fait l'objet de nos expériences.

V - RUTHÉNIUM 106

Des contaminations expérimentales d'un certain nombre d'espèces marines ont été réalisées avec du trichlorure de ruthénium dans le but de vérifier et de compléter une série de résultats obtenus antérieurement [4] avec ce même corps

(*) Les résultats publiés par MORGAN [30] se rapportent, comme l'auteur le spécifie, à des expériences de contaminations pour la plupart non prolongées jusqu'à l'état d'équilibre.

et sur des espèces identiques. En outre nous avons réalisé des contaminations à partir d'autres formes de ruthénium :

- Nitrato nitrosyl ruthénium,
- Nitrato nitrosyl ruthénium entrant dans la composition d'un mélange de radioéléments,
- Radioruthénium entrant dans la composition d'un extrait d'effluent.

On trouvera dans le tableau I et les figures 3 à 5 les données chiffrées et les courbes se rapportant à ces expériences.

V.1. - TRICHLORURE DE RUTHÉNIUM 106 SEUL

L'étude a porté (aquarium 77) sur des espèces représentatives, communes dans le secteur de La Hague et déjà sélectionnées pour des expériences du même genre [4] : *Fucus serratus*, *Chondrus crispus*, *Corallina officinalis*, *Leander serratus*, *Dendrodoa grossularia*.

Les facteurs de concentration pour les algues sont de l'ordre de 100; pour les invertébrés ils vont de quelques unités (*Leander serratus*) à 100 environ (*Dendrodoa*).

On pourra constater (tableau I) que ces résultats présentent par rapport à ceux des précédentes expériences, sinon une concordance rigoureuse, du moins des ordres de grandeur comparables et n'apportent pas de modifications sensibles aux premières données; rappelons que ces expériences sont surtout destinées à fournir des éléments sur le plan de la protection sanitaire; dans cette optique on peut considérer qu'elles sont demeurées reproductibles en dépit des fluctuations individuelles qui tiennent aux conditions mêmes des investigations et à l'échantillonnage restreint des prélèvements.

V.2. - NITRATO NITROSYL RUTHÉNIUM SEUL

Afin de se rapprocher des conditions de contamination d'un effluent réel contenant du ruthénium sous forme complexe, nous avons réalisé une série de contaminations à partir de nitrato nitrosyl ruthénium en milieu 8-10 N, HNO_3 , préparation RKS-1-Amersham (Grande-Bretagne).

Les espèces étudiées (aquariums 78 et 79) ont été les suivantes : *Corallina officinalis*, *Chondrus crispus*, *Fucus serratus*, *Anemonia sulcata*, *Actinia equina*, *Chlamys opercularis*, *Mytilus edulis*, *Cardium edule*, *Gryphaea angulata* (huître portugaise), *Leander serratus*, *Dendrodoa grossularia*, *Blennius pholis*.

Parallèlement à cette série d'expériences d'autres travaux sur les contaminations à partir de nitrato nitrosyl ruthénium ont été effectués : leur publication est en préparation [5], [25] et nous nous bornerons à indiquer sommairement qu'ils concernent : a) 12 espèces d'algues autres que celles déjà citées, b) 3 espèces de crustacés comestibles : *Portunus puber*, *Cancer pagurus*, *Homarus vulgaris*.

En ce qui concerne la première série de recherches les données obtenues (facteurs de concentration) ont été de l'ordre de 50 à 150 pour les algues, de 10 à 20 pour les mollusques, de 50 à 100 pour les autres invertébrés, à l'exception des crevettes pour lesquelles elles sont sensiblement plus faibles.

Au sujet des autres travaux [5], [25], signalons à titre provisoire que le facteur de concentration moyen pour les 12 espèces d'algues (vertes, rouges et brunes)

est de l'ordre de 200; pour les 3 espèces de crustacés comestibles les facteurs de concentration sont de l'ordre de 0,1-0,2 pour la chair et sont compris entre 3 et 10 pour l'hépatopancréas et 4 et 30 pour la carapace, suivant les espèces.

Ces données — en réservant pour le moment la question de la contamination par organes de certaines espèces de crustacés — n'apportent pas d'éléments sensiblement différents par rapport aux précédentes, obtenues avec le trichlorure de ruthénium seul.

V.3. - NITRATO NITROSYL RUTHÉNIUM ENTRANT DANS LA COMPOSITION D'UN MÉLANGE DE RADIOÉLÉMENTS

Le mélange utilisé est celui décrit dans le chapitre consacré au césium 137 et l'expérience (aquarium 80) a porté sur les mêmes espèces. On note des facteurs de concentration de l'ordre de 50 à 150 pour les algues, de l'ordre de 20 pour les mollusques et de 50 pour les autres invertébrés.

Ici encore l'ensemble de ces résultats ne fait pas apparaître de différences marquées par rapport aux facteurs de concentration précédemment indiqués pour les autres types de contamination avec le ruthénium (trichlorure de ruthénium ou nitrato nitrosyl ruthénium seul).

V.4. - RUTHÉNIUM PROVENANT D'UN EXTRAIT D'EFFLUENT

L'extrait d'effluent est celui décrit à propos des contaminations par le césium 137.

Les espèces qui ont fait l'objet des expériences (aquariums 84 et 85) ont déjà été indiquées dans le chapitre consacré au césium : *Chondrus crispus*, *Corallina officinalis*, *Anemonia sulcata*, *Actinia equina*, *Mytilus edulis*, *Blennius pholis*.

Les facteurs de concentration obtenus ont été de l'ordre de 350 pour les algues, de 50 à 100 pour les invertébrés. On pourra constater que les valeurs dont le détail figure dans le tableau I sont — exception faite pour les blennies — plus élevées que celles trouvées pour les autres modes de contamination par le ruthénium (trichlorure de ruthénium seul, nitrato nitrosyl ruthénium seul ou en mélange avec d'autres radioéléments). L'attention doit être attirée sur cette différence qui, sans être considérable (elle n'est affectée en moyenne que d'un facteur 3 à 5), se révèle néanmoins assez constante : il serait intéressant de reprendre l'expérimentation pour s'assurer qu'il ne s'agit pas là d'une simple anomalie, mais d'un phénomène pouvant être lié — ainsi qu'on est tenté de le penser — à la forme physico-chimique du ruthénium employé.

V.5. - REMARQUES GÉNÉRALES SUR LES CONTAMINATIONS PAR LE RUTHÉNIUM 106 ET RÉSULTATS D'ENSEMBLE.

V.5.1. *Algues*

D'après cette nouvelle série d'expériences les valeurs des facteurs de concentration pour les algues se situent (exception faite pour les contaminations à partir d'un extrait d'effluent) entre 52 et 157; l'espèce *Corallina officinalis* présente, dans tous les cas, les facteurs de concentration les plus élevés. Ces valeurs restent

de l'ordre de grandeur de celles indiquées dans notre précédent travail [4] : 100; la valeur 200 observée pour une série de 12 nouvelles espèces étudiées ne s'en écarte pas sensiblement; enfin la valeur 300 pour *Chondrus crispus* et *Corallina officinalis* à partir d'une contamination par un extrait d'effluent est à noter en raison de son niveau quelque peu supérieur, encore que ce phénomène exigerait d'être confirmé, notamment en ce qui concerne la seconde espèce.

V.5.2. Animaux

En ce qui concerne les invertébrés les facteurs de concentration — à l'exception d'une seule valeur — ne dépassent pas 100 et sont souvent de l'ordre de 20 à 50 (l'ascidie *Dendrodoa grossularia* demeure l'espèce qui concentre le plus). Dans l'ensemble nous nous trouvons encore très près du chiffre indiqué dans notre précédent travail : 30 en moyenne.

Le poisson étudié (blennie) continue à présenter une accumulation faible, voire quasi nulle; seule une légère contamination des viscères a été constatée dans un cas.

En résumé — même en tenant compte d'une certaine augmentation de l'accumulation observée avec un extrait d'effluent — nous pouvons considérer que ces résultats ne s'écartent guère, et pour beaucoup sont très voisins, des ordres de grandeur déjà proposés en ce qui concerne les facteurs de concentration du ruthénium.

Nous pouvons, d'après l'ensemble de ces résultats, indiquer les valeurs moyennes suivantes :

algues	:	facteurs de concentration de 100 à 200,
invertébrés	:	" " de 20 à 50,
poissons	:	" " très faibles ou non significatifs.

V.6. - COMPARAISONS AVEC D'AUTRES DONNÉES - DISCUSSION

V.6.1. Algues

Les valeurs des facteurs de concentration du ruthénium indiquées par J. MAUCLINE et W.L. TEMPLETON (références diverses [29]) : 15 à 2 000 et reprises par BRYAN [10] laissent supposer que de grandes variations sont constatées.

En fait parmi les quelques données se rapportant explicitement à des expériences de contamination en laboratoire, nous trouvons celles de HIYAMA [20] : *Ulva pertusa* : 360, *Sargassum thumbergii* : 170, *Meristotheca papulosa* : 60. POLIKARPOV [33] indique également quelques chiffres obtenus expérimentalement : *Ulva rigida* : 95, *Phyllophora nervosa* : 593, *Sargassum natans* : 366, *Sargassum fluitans* : 310. TEMPLETON [35] mentionne pour l'algue *Porphyra* un facteur de concentration de 800 à 1 000.

En ce qui concerne les valeurs obtenues d'après les mesures faites dans la nature, sur un site contaminé par des rejets (secteur nord de la Mer d'Irlande), le chiffre de 660 est indiqué par W.L. TEMPLETON [36] et celui

de 2 000 par J. MAUCLINE et W.L. TEMPLETON [28], pour les algues brunes en particulier (*).

Si rien de définitif ne peut être tiré de ces données il semble cependant, d'après celles de MAUCLINE [27, 28], qu'une contamination des algues sur le site même des rejets d'un effluent réel détermine des facteurs de concentration sensiblement plus importants que dans le cas d'expériences en aquarium; en effet la valeur fournie par MAUCLINE représente une moyenne pour un assez grand nombre d'espèces vivant en Mer d'Irlande dans le milieu contaminé par les rejets de Windscale et offre souvent un écart d'au moins un facteur 10, et plus fréquemment encore d'un facteur 20 ou 30, par rapport à l'ensemble des résultats obtenus en aquarium — aussi bien d'après nos propres expériences que d'après celles réalisées dans d'autres laboratoires. Les résultats de laboratoire impliqueraient que les facteurs de concentration ne dépassent guère 500 le plus souvent, alors que les données recueillies sur le terrain fournissent des valeurs paraissant se situer au-dessus de 500 et atteignant 2 000 en moyenne.

Les raisons de cette différence peuvent être recherchées dans le comportement variable du ruthénium suivant sa forme physico-chimique et suivant les propriétés de l'eau de mer dans laquelle il est introduit.

Rappelons à ce sujet les expériences de JONES [22] montrant que l'accumulation au niveau de l'algue *Porphyra laciniata* à partir d'un extrait d'effluent (MAL) est moins importante que l'accumulation à partir du nitrosyl ruthénium préparé par le Centre d'Amersham; il en est de même pour la moule (*Mytilus edulis*). (Cette observation va plutôt dans le sens inverse de ce que nous avons constaté plus haut à propos de la contamination due à un effluent réel — ce qui permet de souligner, s'il en est besoin, la complexité du problème). Notons d'autre part que le fait d'attendre une stabilisation de l'activité spécifique de l'eau des aquariums pour commencer les expériences aboutit à éliminer du contaminant certaines formes qui par exemple se fixent sur les parois ou sur le filtre, alors qu'elles sont appelées à jouer un rôle plus ou moins important du point de vue biologique dans le cas de rejets réels (**).

Mais il va de soi que d'autres explications ne doivent pas être laissées de côté; il ne faut pas perdre de vue en particulier que le comportement des espèces et l'évolution des phénomènes d'accumulation peuvent être influencés par

(*) Quelques erreurs paraissent devoir être rectifiées en ce qui concerne la provenance de certaines données et le fait que celles-ci soient le résultat ou non d'expériences de laboratoire: ainsi POLIKARPOV [33] cite d'après WALLAUSCHEK [37] la valeur de 2 000 comme résultat expérimental fourni par HIYAMA pour les algues. Nous n'avons pas trouvé dans le travail de HIYAMA [18] mention de cette valeur qui, en fait, doit être celle publiée par J. MAUCLINE et W.L. TEMPLETON [28] et qui se rapporte à des mesures d'échantillons *prélevés dans le secteur côtier de la Mer d'Irlande*.

De même il convient de souligner que la valeur 660 donnée par W.L. TEMPLETON [36] se rapporte explicitement à des mesures effectuées *in situ* et non à des contaminations expérimentales (cité par POLIKARPOV [33] dans la colonne Ru 106 in experiments, page 143).

(**) Signalons, à titre d'indication [16], que dans le milieu eau de mer une partie du ruthénium a tendance à précipiter: par exemple le trichlorure de ruthénium introduit dans l'eau de mer présente au bout de 18 jours 60 % de formes particulières et le nitrate nitrosyl ruthénium 40 %. Il est donc à présumer que nos contaminations avec ces deux corps ont été dues pour l'essentiel aux formes solubles demeurées disponibles (non adsorbées sur les parois ou le filtre) au moment où les espèces ont été mises dans l'aquarium.

les conditions de l'élevage en aquarium, plus ou moins éloignées des conditions de vie dans la nature (modifications du métabolisme, des processus de nutrition, du temps nécessaire pour atteindre l'état d'équilibre, etc...), même lorsqu'on réalise, comme nous l'avons fait, des associations d'espèces tendant à se rapprocher de celles observées dans le milieu. D'autre part il est évident qu'il existe un certain manque de similitude dans les systèmes de références aboutissant aux facteurs de concentration qui dans les cas de rejets réels sont basés sur des mesures de radioactivité d'espèces se renouvelant et souvent se déplaçant dans un milieu soumis lui-même à une contamination plus ou moins fluctuante dans le temps et dans l'espace, alors que l'on peut obtenir une relative stabilité dans le cas d'une contamination expérimentale.

V.6.2. Animaux

Des valeurs également très variables sont indiquées par les auteurs en ce qui concerne les facteurs de concentration du ruthénium chez les invertébrés. Mais ici encore on peut se demander si quelque différence importante n'intervient pas entre les valeurs relevées dans un milieu naturel contaminé et celles obtenues à partir d'expériences en aquarium.

Le facteur de concentration moyen de 2 000 pour les invertébrés indiqué par TEMPLETON [36] et MAUCLINE [27] se rapporte, comme pour les algues, à des mesures faites *in situ*; il est nettement supérieur à la plupart des valeurs indiquées par d'autres auteurs et se rapportant à des expériences de laboratoire. Parmi ces dernières valeurs mentionnons, entre autres, celles de HIYAMA [20] pour une crevette, *Leander pacificus* : 10, pour un mollusque, *Venerupis philippinarum* : de 3,6 à 14 suivant les organes, celles de GONG [15] pour un autre mollusque, le clam, *Venus sp.* : 1, et celles enfin mentionnées par les chercheurs russes (travaux de POLIKAROV et autres travaux cités par cet auteur [33]), pour une espèce de crustacé, *Carcinus manas* : de 1,2 à 193 suivant les organes (branchies exceptées pour lesquelles le facteur de concentration est de 450), pour une espèce de mollusque, *Mytilus galloprovincialis* : de 2 à 53 suivant les organes (byssus excepté dont le facteur de concentration atteint 500), et de 50 pour l'animal entier.

La valeur *moyenne* (individu entier) pour ces organismes étudiés en laboratoire paraît finalement proche de l'ordre de grandeur indiqué d'après nos propres expériences, pour les invertébrés, c'est-à-dire 20 à 50.

Ici encore une différence d'un facteur 10 à 20 ou même plus interviendrait entre les résultats expérimentaux et les données provenant de mesures *in situ*.

En ce qui concerne les vertébrés (poissons), les quelques données publiées font apparaître des valeurs faibles en général, comparables pour certaines d'entre elles à ce que nous avons observé; (voir les chiffres mentionnés par POLIKAROV [33], d'après les travaux de HIYAMA : *Chasmichthys gulosus* : de 2 à 2,5, et d'après ceux de ZESENKO : *Odontogadus merlangus* : 20 pour le tractus digestif, 10 pour les branchies, 1 ou sensiblement au-dessous de 1 pour le reste des organes).

V.6.3. Influence de la forme physico-chimique du ruthénium sur les facteurs de concentration.

KECKES, PUCAR et MARAZOVIC [23, 24] ont montré que le ruthénium sous forme de chlorure serait davantage accumulé chez la moule (*Mytilus edulis*) que le ruthénium sous forme de nitrate. De même lorsqu'on parvient à séparer, à

partir de complexes chlorurés de ruthénium, les formes neutres des formes anioniques et cationiques et à les utiliser comme contaminants, on constate que les formes neutres présentent une accumulation plus importante que les autres chez la même espèce.

Enfin d'après ces expériences on observe une accumulation plus importante dans la chair que dans la coquille (complexes chlorurés ou nitriques du ruthénium) — ce qui, note KECKES, n'est pas en accord avec les résultats de JONES [22] et pourrait provenir de différences dans les techniques utilisées.

Certaines observations de JONES [21] ont montré par ailleurs que le mécanisme et l'importance de la contamination peuvent varier selon le milieu (eau de mer avec ou sans particules en suspension, par exemple) dans lequel est introduit le ruthénium. Enfin il se confirme, à la suite de recherches récemment entreprises au Laboratoire de Radioécologie Marine [16] que les formes particulières de ruthénium déterminent chez les organismes marins des accumulations plus marquées que pour les formes solubles.

De toute manière des recherches complémentaires sont à entreprendre dans ce domaine où subsistent d'importantes lacunes tant sur le plan fondamental que sur celui des applications pratiques au point de vue de la protection sanitaire. Il importerait d'être mieux renseignés sur la cause des importantes variations observées en ce qui concerne les degrés de rétention du radioruthénium chez les organismes marins (*).

VI - CÉRIUM 144

Comme pour le ruthénium 106 nous avons procédé, d'une part, sur quelques espèces représentatives, à des contaminations destinées à venir compléter certains résultats obtenus antérieurement à partir du chlorure de cérium, d'autre part à des contaminations à partir de cérium entrant dans la composition d'un mélange de radioéléments.

On trouvera dans le tableau I et la figure 6 les données chiffrées et les courbes se rapportant à ces expériences.

VI.1. - CHLORURE DE CÉRIUM 144 SEUL

Les espèces étudiées (aquarium 76) ont été les suivantes : *Fucus serratus*, *Chondrus crispus*, *Corallina officinalis*, *Leander serratus*, *Dendrodoa grossularia*. Les valeurs très faibles de l'activité de l'eau de l'aquarium ne permettent pas d'avancer

(*) Il y a lieu de noter que Y. HIYAMA est récemment revenu sur la question des différences constatées dans les facteurs de concentration selon qu'ils résultent de données expérimentales, ou de mesures faites dans le milieu naturel (cf. communication au Congrès International sur la Radioprotection du Milieu devant le Développement des Utilisations Pacifiques de l'Energie Nucléaire, Toulouse, Mars 1967, et références citées, dont : K. IWASHIMA et N. YAMAGATA : Environmental contamination with radioruthenium, 1961-1965; Journal of Radiation Research, 7-2, 91-111 (June 1966); ces deux auteurs indiquent pour le Ruthénium 106 des facteurs de concentration de 1 210 pour une algue (*Ulex pertusa*) et de 1 230 et 3 200 pour un mollusque (*Tapes philippinarum*) d'après les mesures de radioactivité due principalement aux retombées, en certains points des côtes japonaises).

des chiffres significatifs en ce qui concerne les facteurs de concentration. Toutefois des comparaisons demeurent possibles entre les activités spécifiques (impulsions par minute et par gramme) des espèces elles-mêmes (fig. 6), activités qui sont les suivantes au bout de 150 jours environ :

- *Corallina officinalis* : 25 600
- *Chondrus crispus* : 9 270
- *Fucus serratus* : 7 200
- *Dendrodoa grossularia* : 3 020
- *Leander serratus* : 75

Ces résultats, qui montrent par comparaison la valeur élevée atteinte par l'algue *Corallina officinalis*, les valeurs intermédiaires de *Chondrus crispus* et *Fucus serratus*, et plus faibles de *Dendrodoa grossularia*, sont à rapprocher de ceux provenant de précédentes expériences [4] et d'après lesquelles les facteurs de concentration se présentent suivant une succession analogue par ordre décroissant :

- *Corallina officinalis* : 22 000-29 000
- *Chondrus crispus* : 2 450-4 900
- *Fucus serratus* : 2 500-7 000
- *Dendrodoa grossularia* : 2 600-4 000-1 850-1 650
- *Leander serratus* : 70-84-100-350.

A ces résultats s'ajoutent ceux obtenus à la suite d'expériences similaires sur 3 espèces de mollusques comestibles : *Gryphaea angulata*, *Mytilus edulis*, *Venus verrucosa* [25]; nous nous bornerons à indiquer, d'après cette note en préparation, que pour les trois mollusques les valeurs moyennes des facteurs de concentration sont plus élevées pour la coquille que pour la chair.

VI.2. - CÉRIUM ENTRANT DANS LA COMPOSITION D'UN MÉLANGE DE RADIOÉLÉMENTS

Le mélange utilisé (aquarium 80) est celui déjà décrit dans le chapitre consacré au césium et l'expérimentation porte sur les mêmes espèces principales : *Chondrus crispus*, *Corallina officinalis*, *Anemonia sulcata*, *Mytilus edulis*, *Cardium edule*, *Dendrodoa grossularia*. On note (tableau I) des facteurs de concentration de l'ordre de 4 000 (*Chondrus crispus*) à 18 000 (*Corallina officinalis*) pour les algues, de l'ordre de 150 pour les Cnidaire (*Anemonia sulcata*); pour les mollusques de l'ordre de 500 (chair de *Mytilus edulis*) à 700-800 (coquilles de *Mytilus edulis* et de *Cardium edule*), et une valeur plus élevée, de l'ordre de 3 000, pour la chair de *Cardium edule*. Enfin pour l'ascidie *Dendrodoa grossularia* le facteur de concentration est voisin de 3 000.

Il y a lieu de constater qu'en ce qui concerne *Mytilus edulis* nous retrouvons une contamination plus marquée pour la coquille que pour la chair [25], mais que l'inverse se produit pour *Cardium edule*.

La plupart de ces valeurs sont ici encore voisines, dans l'ensemble, de celles mentionnées dans notre précédente publication [4]. On retrouve des valeurs élevées (le plus souvent supérieures à 1 000) pour les algues *Chondrus crispus* et surtout *Corallina officinalis*, ainsi que pour l'ascidie *Dendrodoa grossularia*.

Les contaminations de mollusques (*Mytilus edulis*) offrent également des résultats, sinon rigoureusement comparables, du moins suffisamment voisins entre eux pour qu'on puisse les considérer comme du même ordre de grandeur.

VI.3. - REMARQUES GÉNÉRALES SUR LES CONTAMINATIONS PAR LE CÉRIUM 144 -
RÉSULTATS D'ENSEMBLE

Nous pouvons considérer que ces nouvelles données sur les facteurs de concentration du cérium chez les espèces marines — qu'il s'agisse de contaminations par du chlorure de cérium isolé ou par du chlorure de cérium entrant dans la composition d'un mélange de radioéléments — ne s'écartent pas sensiblement des chiffres globaux que nous avons déjà proposés [4] :

- Algues : 10 000,
- Invertébrés : 1 000.

On observe toutefois chez les invertébrés des variations importantes selon les espèces; il conviendrait de faire une distinction entre les organismes qui semblent présenter des pouvoirs d'accumulation relativement élevés (tels que spongiaires, ascidies) et les autres; des espèces détectrices seraient à sélectionner parmi les premiers. D'autre part, l'accumulation du cérium tantôt plus élevée, tantôt moins élevée, selon les espèces, au niveau de la chair qu'au niveau de la coquille chez les mollusques (*Mytilus*, *Cardium*), paraît également constituer un point qui mériterait de nouvelles études.

VI.4. - COMPARAISONS AVEC D'AUTRES DONNÉES - DISCUSSION

VI.4.1. *Algues*

En ce qui concerne les résultats provenant d'observations sur un site contaminé, la valeur de 700 est indiquée par MAUCHLINE [27] et MAUCHLINE et TEMPLETON [28], la valeur de 660 par TEMPLETON [36].

Du point de vue expérimental POLIKARPOV [31] mentionne les valeurs de 300 à 900 pour les algues vertes et rouges, de 340 pour les algues brunes; plusieurs valeurs pour lesquelles la précision de l'espèce est fournie sont également données par le même auteur [33]; citons entre autres : *Ulva rigida* : 350, *Bryopsis plumosa* : 640, *Cystoseira barbata* : 350, *Corallina rubens* : 330, *Phyllophora nervosa* : 1 100.

A ces données s'ajoutent celles de TEMPLETON [35] pour l'algue *Porphyra umbilicalis* : 800-1 000.

Il est évident que certains de nos résultats diffèrent considérablement de ces données; l'écart le plus important est constaté pour l'espèce *Corallina officinalis* : une espèce très voisine, *Corallina rubens*, étudiée par POLIKARPOV, présente un facteur de concentration de 330 alors que nous trouvons pour *Corallina officinalis* des valeurs de 20 000 à 30 000 environ, soit une différence d'un facteur 80-100.

Les écarts sont moins marqués pour une autre espèce d'algue que nous avons étudiée (*Chondrus crispus*). Nos chiffres font cependant apparaître une valeur moyenne de 4 000 et une différence de l'ordre d'un facteur 5 à 6 est observée par rapport à diverses données publiées concernant les algues en général.

Il paraît difficile dans l'état actuel des investigations d'expliquer ces écarts qui peuvent en partie tenir aux conditions expérimentales; notons à titre d'indication que certains expérimentateurs lavent les échantillons avant d'en mesurer la radiocontamination [31, 19]; cette opération peut avoir pour effet, en éliminant une partie du contaminant déposé ou légèrement adsorbé à la surface de l'échantillon, de diminuer le facteur de concentration.

Nous n'avons pas eu recours à cette méthode : nous avons considéré en effet qu'il convenait précisément d'avoir une estimation globale de la contamination de l'échantillon au sortir de l'eau, car ceci correspond mieux aux conditions d'utilisation de beaucoup de produits marins et permet une évaluation plus rigoureuse des risques.

Le rôle du lavage des échantillons dans la diminution des facteurs de concentration reste d'autre part à déterminer dans le cas des espèces et du radioélément considérés. Il est possible que cette action mécanique soit minime — en regard de phénomènes physico-chimiques ou physiologiques aux conséquences plus complexes et qui viendraient expliquer, ou contribuer à expliquer, les différences importantes constatées (*).

VI.4.2. *Invertébrés*

Le facteur de concentration indiqué par MAUCHLINE [27] : 2 000, se rapporte à des mesures faites sur site contaminé (valeur voisine citée par TEMPLETON [36] : 1 800).

POLIKARPOV fournit de son côté [31] une série de valeurs se rapportant à des expériences en aquarium : *Actinia* : 165, *Mytilus* sp. : tissus mous : 360, coquille : 43, animal entier : 33, crustacés (3 espèces) : 230. Dans une publication plus récente [33] ce même auteur donne quelques valeurs supplémentaires provenant soit de ses propres recherches, soit de celles de ZESSENKO : citons par exemple pour *Carcinus maenas* : exosquelette : 400, branchies : 700, foie : 6, tractus digestif : 4, muscle : 5, pour *Mytilus galloprovincialis* : coquille : 40-50, corps (tissu mou) : 350, byssus : 1 000, branchies : 20, manteau : 4, muscle adducteur : 4, viscères : 40.

A ces données peuvent s'ajouter celles de HIYAMA et SHIMIZU [19] pour une espèce de *Leander* : viscères : 200, muscle : 25, exosquelette : 2.

On peut admettre que la valeur moyenne (1 000) que nous avons indiquée pour les invertébrés, d'après nos propres expériences, tout en étant un peu plus forte, paraît finalement assez voisine, dans l'ensemble, des valeurs trouvées par divers auteurs, et basées également sur des expériences de laboratoire.

Il ne semble pas qu'il existe entre les facteurs de concentration de différences aussi marquées que pour le ruthénium suivant qu'il s'agit d'une contamination naturelle ou d'une contamination expérimentale; assez souvent cependant des valeurs moins élevées sont observées en ce qui concerne les résultats expérimentaux.

Il arrive que certaines contaminations d'organes donnent des résultats très différents : ainsi nous avons constaté que les moules (*Mytilus*) concentraient parfois sensiblement plus au niveau de la coquille [25] qu'au niveau de la chair. Les auteurs russes (POLIKARPOV, ZESSENKO) pour le même genre *Mytilus* ont par contre trouvé une beaucoup plus forte concentration sur la chair que sur la coquille. Ici encore des différences de techniques expérimentales (lavage, brossage,

(*) On peut supposer que les valeurs élevées d'accumulation de l'algue *Corallina* ne sont pas sans rapport avec la composition particulière de cette algue qui, comme les autres Corallinacées, renferme une grande proportion de calcium. Indiquons toutefois que dans nos précédentes expériences [4] nous avons pu comparer l'accumulation chez deux espèces de Corallinacées : *Corallina officinalis* et *Lithophyllum* sp. Or ici encore le facteur d'accumulation est beaucoup plus élevé pour la première espèce.

suppression d'épiphytes, etc...) sont susceptibles d'être en partie à l'origine de ces écarts; mais d'autres hypothèses sur le plan physico-chimique ou physiologique ne doivent pas être écartées *a priori*.

VI.4.3 Vertébrés

Nous nous bornerons à rappeler quelques résultats indiqués dans une de nos précédentes communications [4], concernant une espèce de poisson : *Blennius pholis*; les viscères d'une façon générale étaient sensiblement plus contaminés que la chair; les facteurs de concentration de celle-ci allaient de 1 à 5.

Parmi les valeurs données par HIYAMA [19] pour *Chasmichthys gulosus* celle concernant les muscles est de 0,27; TEMPLETON [35] indique pour *Pleuronectes platessa* un facteur de concentration de 5 (poisson entier).

VII - CONCLUSION

Le présent travail vise essentiellement à apporter des éléments permettant de contribuer, sur le plan de la protection sanitaire, à une évaluation globale de risques et rend compte de résultats de contaminations expérimentales effectuées en aquarium sur diverses espèces marines — comestibles ou non — avec des produits de fission : césium 137, ruthénium 106, cérium 144, appelés à jouer un rôle plus ou moins important en cas de rejets radioactifs en mer.

À titre d'indication les chiffres suivants peuvent être avancés, en tant que facteurs de concentration moyens, compte tenu des recherches effectuées antérieurement au Laboratoire de Radioécologie de La Hague et qui viennent compléter cette étude.

	Césium	Ruthénium	Cérium
Algues	≤ 40	100 à 200	2 000 à 10 000
Invertébrés	≤ 40	20 à 50	500 à 2 000
Poisson	≤ 40	1	≤ 100 (chair 1 à 5)

Diverses formes chimiques ou physico-chimiques de césium, de cérium et de ruthénium ont été utilisées (extraits d'effluents, formes complexes, mélanges des trois radioéléments) : ceci n'a pas entraîné de conséquences appréciables du point de vue des facteurs de concentration pour le césium et le cérium; en ce qui concerne le ruthénium plusieurs contaminations par un extrait d'effluent ont entraîné un phénomène d'accumulation plus accentué que pour les autres formes de ce radioélément.

Les résultats comparés des contaminations par les trois radioéléments étudiés font apparaître les points suivants :

a) pour le césium 137 l'accumulation se produit surtout dans la chair de certaines espèces : crevettes, blennies; elle est, par contre, le plus souvent très faible au niveau de la coquille des mollusques.

b) Parmi les espèces qui concentrent le plus le ruthénium 106, l'algue *Corallina officinalis* et l'ascidie *Dendrodoa grossularia* sont à mentionner.

c) A l'égard du cérium 144, enfin, l'algue *Corallina officinalis* est remarquable par son facteur de concentration élevé (de l'ordre de 20 000); les spongiaires et les ascidies sont parmi les invertébrés qui concentrent le plus ce radioélément.

Les valeurs que nous avons déterminées — à l'exception de celles concernant les algues contaminées par le cérium — sont du même ordre de grandeur que la plupart des données figurant dans la littérature et relatives à des expériences sur des espèces marines plus ou moins voisines de celles sur lesquelles ont porté nos recherches.

Par contre, les comparaisons avec certaines données provenant de mesures faites dans un milieu naturel contaminé par des rejets font apparaître, tout au moins pour le ruthénium, des différences assez marquées. Des modifications des propriétés physico-chimiques du radioélément sont vraisemblablement à l'origine de ces différences. Le devenir des formes solubles et des formes particulières dans le milieu marin paraît à ce point de vue très important.

En ce qui concerne les espèces commerciales, et pour chacun des deux radio-éléments : ruthénium et cérium, il se confirme que l'algue *Chondrus crispus* (lichen carragaheen) présente un pouvoir d'accumulation plus élevé que les mollusques et les crustacés tels que le vanneau, la moule, la coque, la crevette rose.

TABEAU I
FACTEURS DE CONCENTRATION

Aquariums 5, 6, 7, 8, 11, 74 et 75 : sulfate de césium 137 - Aquarium 76 : chlorure de cérium 144 - Aquarium 77 : chlorure de ruthénium 106 - Aquariums 78 et 79 : nitrate nitrosyl ruthénium 106 (Amersham) - Aquarium 80 : mélange de ruthénium 106 (Amersham), césium 137 et cérium 144 - Aquariums 84 et 85 : extrait d'effluent de Marcoule (42 % ruthénium 106 et 51 % césium 137).

CÉSIUM 137			RUTHÉNIUM 106			CÉRIUM 144		
Espèces et n° d'aquariums	Facteurs de concentration		N° d'aquariums	Facteurs de concentration	(2)	N° d'aqu.	Facteurs de concentration (1)	(2)
Ulva sp.	6- 8	4 (74 j) - 3 (74 j)						
Enterom. sp.	6	4 (31 j)						
Fucus serr.	8-75-80	6 (31 j) - 16 (153 j) - 4 (44 j)	77-78-80	105-125 (36 j) - 47 (44 j)	171-67	76-80	<u>7 200</u> - 2 940 (44 j)	2 500-7 042
Chondrus crisp.	8-74-75-80-84	4 (74 j) - 19-9 (107 j) - 10-15	77-78-79-80-84	93-52-84-57-337	67-120	76-80	<u>9 270</u> - 4 625	2 450-4 900
Corallina off.	5-74-75-80-84	9 (74 j) - 13-14-13-8	77-78-79-80-84	126-157-146-138-350	357-225	76-80	<u>25 600</u> - 18 030	22 000-29 000
Rhodymenia palm.	5	4 (74 j)						
Anemonia sulc.	74-75-80-85	16-14-12-11	78-79-80-85	41-42-44-153	28	80	148	108
Actinia equ.	74-75-80-85	14-17-9 (44 j) - 10	78-79-80-85	10 (19 j) - 50-13 (44 j) - 88	30	80	49 (44 j)	200
Asterina gib.	6	7 (74 j)						
Chlamys op. (chair)	74-80	14-8 (44 j)	78-80	22-4 (44 j)	70-30	80	475 (44 j)	225-570
— (coquille)	74-80	0,7-0 (44 j)	78-80	6-5 (44 j)	12-8	80	1 040 (44 j)	550-733
Tapes sp. (chair)	11	11 (74 j)						
— (coquille)	11	0,9 (31 j)						
Cardium ed. (chair)	80	10	78-79-80	15-17-13		80	3 227	
— (coquille)	80	0,3	78-79-80	19-14-18		80	863	
Mytilus ed. (chair)	80-84-85	11-10-10	78-79-80-84-85	17-20-21-27-54	22	80	500	1 222
— (coquille)	80-84-85	0,9-5-0,3	78-79-80-84-85	19-24-18-55-94	7	80	680	1 066
Gryphaea ang. (chair)			78-79	8-7				
— (coquille)			78-79	8-11				
Calliostoma ziz. (chair)	80	8 (44 j)	78-80	30 (19 j) - 71 (44 j)				
— (coquille)	80	0 (44 j)	78-80	25 (36 j) - 4 (44 j)				
Leander serr.	74-75	34-21	77-79	2-3	5-3-9	76	<u>75</u>	70-84-100-350
Dendrodoa gross.	7-80	8 (74 j) - 4	77-78-80	90-86-54	168-150-68-125	76-80	<u>3 020</u> - 2 803	2 567-4 000-1 850-1 650
Blennius (chair)	75-85	36-15	79-85	0,3-NS*	0,1-NS*			
— (arêtes)	75-85	23-13	79-85	0,6-NS*	0,4-0,5			
— (viscères)	75-85	17-15	79-85	4-NS*	1-1			
Sédiment (sable)	75	21 (107 j)		*NS : non significatif				

(1) En ce qui concerne l'aquarium 76 (chlorure de cérium 144) les chiffres — soulignés — se rapportent à l'activité spécifique des espèces en impulsions/mn/g, poids humide, la faible activité de l'eau n'ayant pas permis d'exprimer un facteur de concentration.

(2) Facteurs de concentration provenant d'expériences précédentes (cf. ANCELLIN et VILQUIN [4]).

FIG. 1. — Contamination expérimentale, Césium 137 (Aquarium 75).

FIG. 2. — Contamination expérimentale, Césium 137 (Aquarium 85).

FIG. 3. — Contamination expérimentale, Ruthénium 106 (Aquarium 85).

FIG. 4. — Contamination expérimentale, Ruthénium 106 (Aquarium 80).

FIG. 5. — Contamination expérimentale, Ruthénium 106 (Aquarium 78).

FIG. 6. — Contamination expérimentale, Césium 144 (Aquarium 80).

BIBLIOGRAPHIE

- [1] ANONYME. The effects of atomic radiation on oceanography and fisheries. Public. 551. Nation. Acad. of Sc. Washington D.C., 1957.
- [2] ANCELLIN, J., MICHON, G. et VILQUIN, A. Contaminations expérimentales de crevettes roses par le césium 137. Rapport C.E.A. R 2818, 1965.
- [3] ANCELLIN, J., TEXIER, C., VILQUIN, A. et VILQUIN-DUBOIS, C. Contaminations expérimentales de balanes (*Balanus crenatus* et *Balanus balanoides*) par les produits de fission : cérium 144, césium 137, ruthénium 106 et zirconium 95. Rapport C.E.A., 1966 (non publié).
- [4] ANCELLIN, J. et VILQUIN, A. Contaminations expérimentales d'espèces marines par le cérium 144, le ruthénium 106 et le zirconium 95. Disp. of radioactiv. wastes into seas, oceans and surface waters. A.I.E.A. Vienne, pp. 583-604, 1966.
- [5] BRUNIN, B. Contribution à l'étude de l'absorption du nitrosyl ruthénium 106 par les végétaux marins. Note en préparation.
- [6] BRYAN G.W. The accumulation of radioactive caesium in crabs. *Journ. of Mar. Biol. Ass.*, 41 (3), pp. 551-575, 1961.
- [7] BRYAN, G.W. and WARD, E. Potassium metabolism and the accumulation of caesium 137 by decapod crustacea. *Journ. of Mar. Biol. Ass.*, 42 (2), pp. 199-241, 1962.
- [8] BRYAN, G.W. The accumulation of radioactive caesium by marine invertebrates. *Journ. of Mar. Biol. Ass.*, 43 (2), pp. 519-539, 1963.
- [9] BRYAN, G.W. The accumulation of caesium 137 by brackish water invertebrates and its relation to the regulation of potassium and sodium. *Journ. of Mar. Biol. Ass.*, 43 (2), pp. 541-565, 1963.
- [10] BRYAN, G.W. Accumulation of radionuclides by aquatic organisms of economic importance in the United Kingdom. Disp. of radioact. wastes into seas, oceans and surface waters, A.I.E.A. Vienne, pp. 623-637, 1966.
- [11] CHIPMAN, W.A. Biological accumulation of radioactive materials. Proc. of the first ann. Texas conf. on utiliz. of atom. energy, pp. 36-41, 1958.
- [12] CHIPMAN, W.A. Biological aspects of disposal of radioactive wastes in marine environment. « Disp. of radioact. wastes » II, 1-15 conf. Monaco, 16-21 Nov. 1959. A.I.E.A. Vienne, 1960.
- [13] FONTAINE, Y. La contamination radioactive des milieux et des organismes aquatiques. Rapport C.E.A. n° 1 588, 1960.
- [14] FOULQUIER, L., BOVARD, P. et GRAUBY, A. Contamination expérimentale de *Margaritana margaritifera* (L) (bivalve d'eau douce) par le césium 137. Rapport C.E.A., R. 3 054, 1966.
- [15] GONG, J.K., SHIPMAN, W.H., WEISS, H.V. et COHN, S.H. Uptake of fission products and neutron induced radionuclides by the clam. *Proc. Soc. Exp. Biol. Med.*, 95, pp. 451-454, 1957.
- [16] GUEGUENIAT, P. Note en préparation.
- [17] GUTKNECHT, J. Uptake and retention of caesium 137 and zinc 65 by seaweeds. *Limn. and Oceanog.*, vol. 10, n° 1, pp. 58-66, Janvier 1965.
- [18] HIYAMA, Y. Studies in uptake of radioisotopes by edible marine products. Technical report on I.A.E.A. research contract, Septembre 1962.
- [19] HIYAMA, Y. et SHIMIZU, M. On the concentration factors of radioactive Cs, Sr, Cd, Zn and Ce in marine organisms. *Records on Oceanog. works in Japan*, vol 7, n° 2, pp. 43-77, Mars 1964.
- [20] HIYAMA, Y. et MATSUBARA, J. On the concentration factors of radioactive I, Co, Fe and Ru in marine organisms. *Records of oceanog. works in Japan*, vol. 7, n° 2, pp. 79-105, Mars 1964.
- [21] JONES, R.F. et BATTY, I. The mechanism of accumulation of fission products by fine particles and marine organisms. U.K.A.E.A. IGRTM/W.756, 1957.
- [22] JONES, R.F. The accumulation of nitrosyl ruthenium by fine particles and marine organisms. *Limn. and Oceanogr.*, vol. 5, n° 3, pp. 312-325, Juillet 1960.
- [23] KECKES, S., PUCAR, Z. and MARAZOVIC, L. The influence of the physicochemical form of ruthenium 106 on its uptake by mussels from sea water. Radioecological concentration processes. Institute « Ruder Boskovic », Annual report on research contract, pp. 189-193, July 1965-June 1966.

- [24] KECKES, S., PUCAR, Z. et MARAZOVIC, L. Accumulation of electrochemically separated physicochemical forms of ruthenium 106 by mussels. Institute « Ruder Boskovic », Annual report on Research contract, pp. 213-224, July 1965-June 1966.
- [25] LE GALL, P. Contamination expérimentale d'espèces marines comestibles par le césium 137, le césium 137 et le ruthénium 106. Note en préparation.
- [26] LEMÉE, J.C. Note en préparation.
- [27] MAUCHLINE, J. The biological and geographical distribution in the Irish Sea of radioactive effluent from Windscale Works, 1959 to 1960. U.K.A.E.A., Rep. n° AHSB (RP) R.27, Harwell, 1963.
- [28] MAUCHLINE, J. and TEMPLETON, W.L. Dispersion in the Irish Sea of the radioactive liquid effluent from Windscale Works of the U.K. Atomic Energy Authority. *Nature*, vol. 198, pp. 623-626, Mai 1963.
- [29] MAUCHLINE, J. et TEMPLETON, W.L. Artificial and natural radioisotopes in the marine environment. *Oceanogr. and mar. Biol. Annual review*, vol. 2, pp. 229-279, 1964.
- [30] MORGAN, G.B. The uptake of radioactivity by fish and shellfish. I/Caesium 134 by whole animals. *Journ. Mar. Biol. Ass.*, vol. 44, n° 1, pp. 259-271, 1964.
- [31] POLIKARPOV, G.G. Ability of some Black Sea organisms to accumulate fission products. *Science*, vol. 133, pp. 1127-1128, Avril 1961.
- [32] POLIKARPOV, G.G. Data on accumulation coefficient of P 32, S 35, Sr 90, Y 91, Cs 137 and Ce 144 in marine organisms. *Tr. Sevastopol biol. Stants*, 14, pp. 314-328, 1961 (JPRS 24.227, Avril 1964).
- [33] POLIKARPOV, G.G. Radioecology of aquatic organisms. *North Holland publishing Compagny*, 1966.
- [34] SCOTT, R. A study of cesium accumulation by marine algae. Proc. 2nd Radioisotope conf. Oxford, 1954. *Med. Physiol. Appl.*, pp. 373-380.
- [35] TEMPLETON, W.L. Fission products and aquatic organisms. Effects of pollution on living material. *Inst. of Biology*, London, n° 8, pp. 125-140, 1959.
- [36] TEMPLETON, W.L. Transfer of radionuclides from the environment through aquatic food products to man. Agricultural and public health aspects of radioactive contamination in normal and emergency situations. Papers presented at the seminar, Scheveningen, 11-15, Déc. 1961, F.A.O., Rome, 1964.
- [37] WALLAUSCHEK, E. et LUTZEN, J. Study of problems relating to radioactive wastes. *Disposal into the North Sea*, vol. I, II, O.C.D.E., Paris, 1963-1964.
- [38] ZESENKO, A.Y. et POLIKARPOV, G.G. Ruthenium 106 concentration and distribution factors in the organs and tissues of marine molluscs. *Radioecology* 5 (1), pp. 320-322 (AEC Tr. 6598).