

CONTAMINATIONS EXPÉRIMENTALES D'ESPÈCES MARINES PAR DES FORMES DE RUTHÉNIUM 106 SOLUBLES ET INSOLUBLES DANS L'EAU DE MER

A. VILQUIN*

(Manuscrit reçu le 28 Avril 1969)

RÉSUMÉ

A la suite d'expériences semblables de contaminations par du ruthénium 106 l'auteur détermine les pouvoirs contaminants respectifs de formes solubles et insolubles de ce radioélément.

Les résultats, exprimés en facteurs de concentration, font apparaître pour les formes insolubles un pouvoir de contamination 3 à 10 fois plus élevé que pour les formes solubles. Les valeurs obtenues sont comparées d'autre part à celles relevées dans le milieu naturel soumis à l'influence des rejets radioactifs.

SUMMARY

Repeating similar experiences of contamination by ruthenium 106 the author has determined the respective contaminating abilities of the radionuclide soluble and insoluble forms.

The results expressed as concentration factors have demonstrated the contaminating ability for insoluble forms to be from 3 to 10 times higher than for soluble forms. Besides, the values obtained were compared with values found in the natural environment submitted to the influence of radioactive waste disposals.

I - INTRODUCTION

Nous avons rendu compte dans de précédentes publications [1 - 2 - 3] de résultats de contaminations expérimentales d'espèces marines par le ruthénium 106. Il s'agissait des composés suivants :

- Trichlorure de ruthénium seul,
- Nitrate nitrosyl ruthénium seul,
- Nitrate nitrosyl ruthénium entrant dans la composition d'un mélange de radioéléments,
- Ruthénium provenant d'un extrait d'effluent.

* Groupe de Radioécologie Marine — CEA/DPS — Centre de La Hague — B.P. n° 209, 50 - Cherbourg.

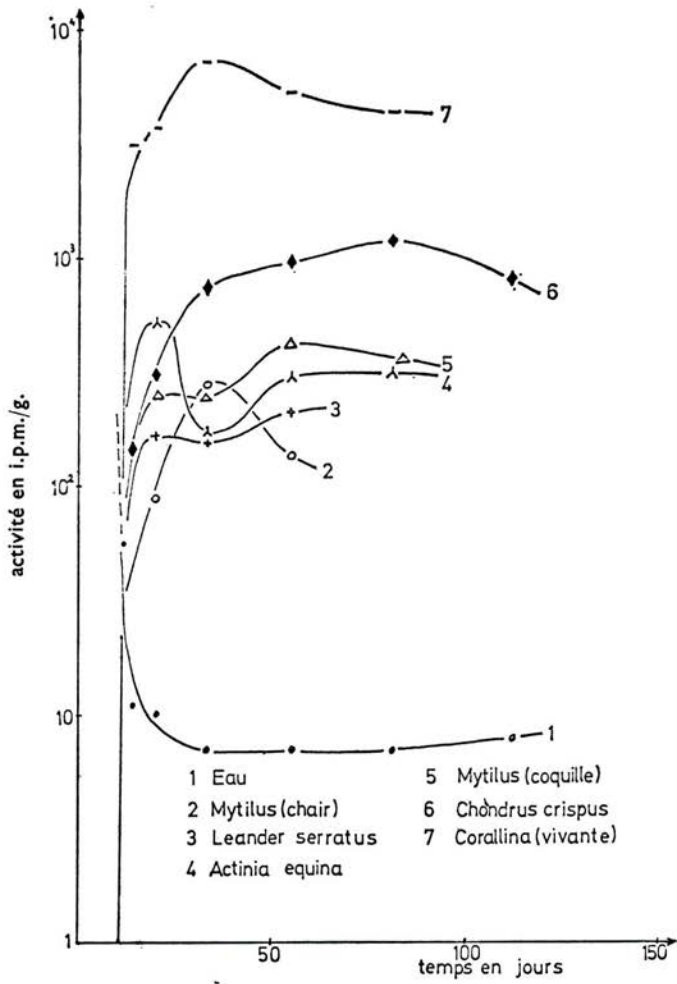


FIG. 1 — Ruthénium 106, forme insoluble (aq. 105)

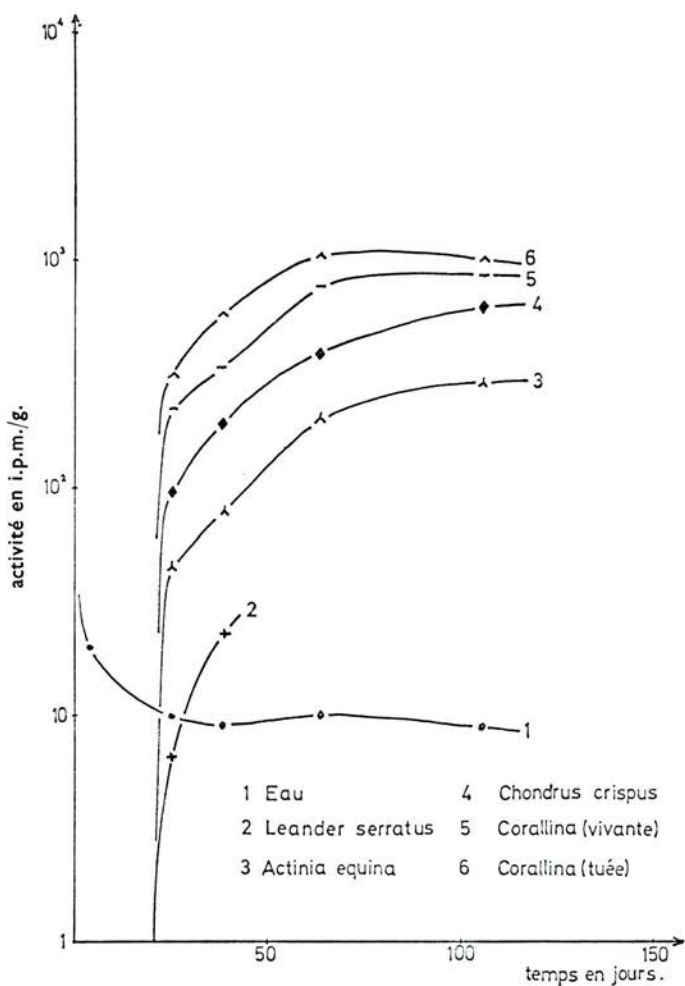


FIG. 2 — Ruthénium 106, forme soluble (aq. 107)

Nous rappelons que les facteurs de concentration *moyens* à la suite de ces expériences réalisées en aquariums étaient les suivants :

- Algues : 100 à 200,
- Invertébrés : 20 à 50,
- Poisson : 1.

Les divers composés chimiques de ruthénium utilisés ne paraissaient pas déterminer de différences marquées au point de vue des facteurs de concentration sauf en ce qui concerne le ruthénium provenant d'un extrait d'effluent dont l'accumulation chez les espèces étudiées était sensiblement plus prononcée.

TABLEAU I
FACTEURS DE CONCENTRATION

Especies	Ruthénium insoluble			Ruthénium soluble	
	104	105	106	107	108
Chondrus crispus	1 000-1 200	110-130	120-200	70	88
Corallina officinalis vivante	2 900-3 500	700-1 000	600-700	96	133
— morte			2 000	115	140
Actinia equina	85-100	50	50-60	33	27-29
Leander serratus	24-42	25-30	30-50	2,5	7
Mytilus edulis chair	50-16	40	15-20		
— coquille	92-98	40-60	50-60		

Par contre des différences notables étaient enregistrées entre les résultats expérimentaux et les données provenant de mesures faites *in situ*, en Mer d'Irlande, dans la région soumise à l'influence des rejets de Windscale [5 - 6] : en effet, les facteurs de concentration déterminés d'après ces mesures faisaient apparaître des valeurs beaucoup plus élevées (souvent d'un facteur 10 à 20) que celles obtenues en aquarium.

Diverses hypothèses pouvaient être avancées pour expliquer ces différences. L'attention était attirée, en particulier, sur le fait qu'une partie du ruthénium précipitant au contact de l'eau de mer pouvait se trouver fixée sur les parois de l'aquarium et surtout sur le filtre, et ceci avant même qu'on introduise les animaux dans le milieu contaminé. La contamination ne s'effectuait plus dès lors qu'avec les seules formes solubles de ruthénium demeurées disponibles et déterminant pour leur part une accumulation moins forte que les formes insolubles.

C'est en vue de vérifier cette hypothèse que ces nouvelles expériences, dont nous rendons compte, ont été réalisées.

Ce travail, toutefois, a nécessité au préalable la mise au point délicate d'une méthode de séparation des formes de ruthénium solubles et insolubles dans l'eau de mer. On trouvera un certain nombre d'indications dans la communication [4] traitant de cette question que nous n'aborderons pas ici.

II - CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

ESPÈCES ÉTUDIÉES - EXPRESSION DES RÉSULTATS (cf. tableau II)

Les expériences ont été réalisées, comme celles précédemment décrites [1 - 2 - 3], dans une salle climatisée à 14-18°, éclairée par la lumière du jour. Les dimensions des aquariums, en résine armée de fibres de verre, sont les suivantes : longueur : 50 cm, largeur : 30 cm, hauteur : 40 cm; chacun de ces aquariums

TABLEAU II
CARACTÉRISTIQUES EXPÉRIMENTALES

N° aquarium	Radionucléide	Filtration	Volume	Date de contamination de l'aquarium	Espèces étudiées date d'introduction
104	^{106}Ru insoluble*	Néant	40 l	9-3-67	23-2-67 : Chondrus crispus Corallina officinalis (viv.) Actinia equina Mytilus edulis Leander serratus
105	—	Néant	40 l	9-3-67	22 et 23-3-67 : Chondrus crispus Corallina officinalis (viv.) Actinia equina Mytilus edulis Leander serratus
106	—	Néant	40 l	9-3-67	22 et 23-3-67 : Chondrus crispus Corallina officinalis (viv.) Actinia equina Mytilus edulis Leander serratus 6-4-67 : Corallina officinalis (mortes)
107	^{106}Ru soluble*	oui	40 l	du 23-2 au 17-3-67	6 et 7-4-67 : Chondrus crispus Corallina officinalis (vivantes et mortes) Actinia equina Leander serratus
108	—	oui	40 l	du 23-2 au 17-3-67	6 et 7-4-67 : Chondrus crispus Corallina officinalis (vivantes et mortes) Actinia equina Leander serratus

* Isolé au Laboratoire de Radioécologie Marine de La Hague.

contient 40 litres d'eau de mer non filtrée au préalable et fonctionne en circuit fermé.

Pour les contaminations par les formes solubles le système de filtration-aération-circulation déjà employé (« Microfiltre Nept ») a été conservé. Par contre, pour les contaminations par formes insolubles, ce filtre, qui risquait de fausser les résultats en retenant les particules les plus fines, a été abandonné. Dans ce cas le fond de l'aquarium est laissé nu. L'agitation de l'eau est assurée par un agitateur rotatif « Felkin » en acier inoxydable et l'aération par injection d'air à travers deux diffuseurs poreux.

Les recherches ont porté sur quelques espèces côtières communes :

- Algues : *Chondrus crispus* (lichen carragaheen),
Corallina officinalis (coralline),
 Invertébrés : *Actinia equina* (anémone de mer),
Leander serratus (crevette rose),
Mytilus edulis (moule).

Les conditions de mesure sont les mêmes que celles indiquées précédemment [3].

III - RÉSULTATS

Les courbes 1 et 2 représentent l'évolution de la contamination dans deux aquariums. Elles ont été sélectionnées à titre d'exemple. La première se rapporte à une contamination par du ruthénium insoluble, la seconde à une contamination par du ruthénium soluble.

Le tableau I rend compte pour les cinq aquariums (104 - 105 - 106 - 107 et 108) des résultats obtenus sous forme de facteurs de concentration exprimant, comme dans nos précédentes expériences, le rapport entre l'activité spécifique des espèces (par gramme de poids frais) et celle de l'eau. (Valeurs maximales de ce rapport, au cours de l'évolution de la contamination.)

A - FORMES INSOLUBLES (AQUARIUMS 104 - 105 - 106)

Ces formes insolubles de ruthénium 106 proviennent des premières séparations réalisées au laboratoire. Elles contiennent un faible pourcentage de formes qualifiées d'« intermédiaires », c'est-à-dire de formes pouvant redonner naissance à des formes solubles, au bout d'un certain temps.

En ce qui concerne les aquariums 105 et 106, on notera l'homogénéité des résultats d'un aquarium à l'autre et pour une espèce donnée. L'accumulation chez les algues — et notamment les corallines — est nettement plus élevée que chez les invertébrés. En ce qui concerne l'aquarium 104, les valeurs trouvées sont sensiblement plus fortes que pour les deux autres. Il s'agit en fait d'un aquarium dont la contamination a été effectuée *après* l'introduction des animaux, contrairement à notre technique habituelle qui consiste à attendre que la radioactivité du milieu se stabilise avant d'y mettre les espèces soumises à l'expérimentation.

Dans le cas de cet aquarium 104, il est possible que les espèces aient capté dès le début de l'expérience le contaminant immédiatement disponible et qui,

dans les autres cas, avait déjà pu se fixer en partie sur les parois. (*cf.* diminution classique de l'activité de l'eau de l'aquarium en première phase de l'expérience.)

B - FORMES SOLUBLES (AQUARIUMS 107 et 108)

Comme dans le cas précédent, on notera la bonne homogénéité des résultats d'un aquarium à l'autre. La différence d'accumulation entre les algues et les invertébrés est ici moins importante.

C - COMPARAISON ET INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS

1° *Contaminations expérimentales*

Il convient d'établir tout d'abord une comparaison en valeur relative entre les résultats des contaminations par le ruthénium insoluble et ceux des contaminations par le ruthénium soluble.

Même en ne tenant pas compte de l'aquarium 104, pour lequel le processus expérimental fut différent des autres, on voit que les facteurs de concentration obtenus avec les formes solubles sont dans l'ensemble sensiblement moins élevés que ceux déterminés avec les formes insolubles. Ceci est surtout notable pour l'algue coralline (écart d'un facteur 5 environ) et pour la crevette rose (écart d'un facteur 10 environ).

Notons qu'en ce qui concerne les algues mortes (corallines « tuées » par immersion dans l'eau bouillante avant l'introduction dans l'aquarium), celles-ci se contaminent au moins autant que les échantillons vivants de la même espèce, quelle que soit la forme du contaminant, ce qui démontre le rôle important des phénomènes passifs — adsorption notamment.

Si nous établissons des comparaisons avec nos premières expérimentations, le phénomène paraît également bien marqué, au moins pour certaines espèces telles que la crevette rose (différence d'un facteur 10 environ entre les valeurs relevées pour le trichlorure - soluble - et les formes complexes insolubles) et telles que l'algue coralline (différence d'un facteur 2 à 3 et parfois plus).

2° *Contamination in situ*

Ainsi que nous l'avons déjà indiqué, les résultats de mesures en milieu naturel font apparaître des facteurs de concentration beaucoup plus élevés que ceux obtenus d'après les premiers résultats expérimentaux. Ces écarts sont évidemment moins sensibles si l'on établit maintenant une comparaison avec les résultats fournis par le ruthénium insoluble. Dans le cas des algues, il arrive même qu'on soit en présence de valeurs comparables à celles mentionnées par les chercheurs britanniques d'après les mesures faites sur le site de Windscale [5 - 6 - 7 - 8]; les différences demeurent plus marquées dans le cas des invertébrés.

Cette augmentation du facteur de concentration est à rapprocher de ce qui a pu être observé à la suite de contaminations avec un extrait d'effluent pouvant entraîner la formation au contact de l'eau de mer d'un pourcentage plus important de ruthénium insoluble [3].

CONCLUSION

La contamination comparée d'espèces marines par le ruthénium 106 sous différentes formes physico-chimiques, solubles ou insolubles dans l'eau de mer, fait apparaître une élévation notable des facteurs de concentration en ce qui concerne les formes insolubles. Les valeurs obtenues expérimentalement dans ce dernier cas se rapprochent de celles provenant de mesures effectuées *in situ*.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] ANCELLIN, J., BOVARD, P. et VILQUIN A. Nouvelles études de contaminations expérimentales d'espèces marines par le ruthénium 106. Société Française de Radioprotection. Actes du Congrès International sur la Radioprotection du Milieu, Toulouse 14-16 mars 1967, pp. 213-234, 1967.
- [2] ANCELLIN J. et VILQUIN A. Contaminations expérimentales d'espèces marines par le cérium 144, le ruthénium 106 et le zirconium 95. Disposal of radioactive wastes into seas, oceans and surface waters, Vienne, 16-20 May, 1966. A.I.E.A. Vienne, pp. 583-604, 1966.
- [3] ANCELLIN J. et VILQUIN A. Nouvelles études de contaminations expérimentales d'espèces marines par le caesium 137, le ruthénium 106 et le cérium 144. *Radioprotection*, 3, 3, 185-213, 1968.
- [4] GUEGUENIAT P., BOVARD P. et ANCELLIN J. Influence de la forme physico-chimique du ruthénium sur la contamination des organismes marins. C.R. Acad. Sc., 268, série D, 6, pp. 967-979, 1969.
- [5] MAUCLINE 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. AHSB (RP) R. 27 - Harwell, 1963.
- [6] MAUCLINE J. et TEMPLETON W.L. Artificial and natural radioisotopes in the marine environment. *Oceanogr. and mar. Biol. Annual review*, 2, pp. 229-279, 1964.
- [7] PRESTON A. et JEFFERIES D.F. The Assessment of the principal public radiation exposure from, and the resulting control of discharges of aqueous radioactive waste from the United Kingdom Atomic Energy Authority factory at Windscale, Cumberland. *Health Physics*, 13, pp. 477-485, 1967.
- [8] PRESTON A. et JEFFERIES D.F. Aquatics aspects in chronic and acute contamination situations. Séminaire sur les aspects de la contamination radioactive de l'environnement vis-à-vis de l'Agriculture et de la Santé Publique. Vienne, A.I.E.A., 24-28 mars 1969.