ÉTUDE COMPARÉE DE LA CONTAMINATION EXPÉRIMENTALE DE MOLLUSQUES LAMELLIBRANCHES MARINS ET DULCICOLES PAR LE CAESIUM 137

M. AVARGUÈS*†, L. FOULQUIER** et A. VILQUIN***

avec la collaboration technique de

A. LAMBRECHTS** et G. MOISAN***

(Manuscrit reçu le 29 novembre 1972)

RÉSUMÉ

Les auteurs rendent compte d'expériences de contamination par le caesium 137 de deux Mollusques Lamellibranches, l'un marin : *Cardium edule* (L.), l'autre dulcicole : *Anodonta cygnea* (L.).

Ils comparent entre les deux milieux, les évolutions de la radioactivité spécifique de l'eau et des animaux ainsi que les facteurs de concentration. L'importance du facteur d'épuration par le milieu aquatique est mise en lumière : le facteur de concentration n'est pas le seul paramètre à retenir lorsqu'on veut établir des bilans comparatifs de la rétention de la radioactivité en milieu marin et en milieu dulcicole.

ABSTRACT

Two Lamellibranch Mollusks, a marine one : *Cardium edule* (L.), and a fresh-water one : *Anodonta cygnea* (L.) were contaminated by cesium 137. The evolution of the specific activities of the water and the animals and the accumulation factors were compared for the respective environments. The part played by clearance processes by the aquatic environment was emphasized : the concentration factor should not be the only parameter to consider when comparing radioactivity uptakes in the marine and fresh-water environments.

* Département de Protection, Direction, Centre de Fontenay-aux-Roses.

† Décédé.

** Département de Protection, Service de Recherche Toxicologique et Ecologique, Laboratoire de Radioécologie Continentale, Centre de Cadarache.

*** Département de Protection, Service de Recherche Toxicologique et Ecologique, Laboratoire de Radioécologie Marine, Centre de La Hague.

I - INTRODUCTION

L'augmentation du nombre des installations nucléaires, correspondant à un besoin croissant d'énergie, pose en matière de protection sanitaire deux types de problèmes selon que les effluents faiblement radioactifs issus des usines de traitement sont rejetés en mer ou en rivière. Les recherches radioécologiques sont poursuivies dans ces deux milieux, mais il est important de relier ces études de manière à pouvoir préparer des bilans comparatifs de la capacité d'acceptation radiologique et des processus de contamination des biotopes marins et dulci-coles. Dans ce but nous avons mené parallèlement, selon un protocole identique, des contaminations expérimentales de Mollusques Lamellibranches par le caesium 137. Les bivalves, par leur mode de vie, leur répartition, leur morphologie et leur métabolisme sont particulièrement intéressants du point de vue de la radio-contamination [2], [3], [12], [14], [15], [16] : ils se nourrissent de particules en suspension et des micro-organismes de l'eau qu'ils retiennent par une filtration intense. Ils vivent plus ou moins enfouis dans les sédiments. Ainsi ces organismes sont en contact avec les principaux vecteurs des radionucléides. De plus leur très large biogéographie permet des études comparées des processus de contamination en fonction de différents milieux.

En eau douce, *Anodonta cygnea* (L.) est très répandue dans le bassin rhodanien. Elle vit à demi-enfouie dans des sédiments de type vaseux, dans les bras morts, les canaux, les zones à courant faible,... [8].

Dans le milieu marin, nous devons choisir une espèce dont le type d'habitat se rapproche de celui des Anodontes. *Cardium edule* (L.) a été préférée à d'autres en raison de son importance économique.

II - PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

1° AQUARIOLOGIE

Les contaminations sont réalisées dans des aquariums en résine armée de fibre de verre (50 × 30 × 40 cm), avec couvercle, contenant 35 à 40 litres d'eau (température 14 à 16 °C, éclairage naturel). L'eau douce utilisée est légèrement basique ($pH = 7,5$) et contient 50 à 100 mg de matières dissoutes; elle est riche en sels calcaires (Ca^{++} : 76 mg/l) et sa teneur en potassium est de l'ordre de 2 mg par litre. L'eau de mer est naturelle et prélevée dans le secteur de la Hague, son pH est de l'ordre de 8; sa salinité est de 34 à 34,5 pour mille, sa teneur en calcium de 400 mg/l, sa teneur en potassium de 380 mg/l, sa teneur en caesium stable de 0,002 mg/l.

Le fond de l'aquarium est recouvert d'une couche de laine de verre, puis de sable. Sous la laine de verre, un « microfiltre » draine l'eau qui est ensuite épuisée dans un tube vertical par injection d'air à travers un diffuseur poreux : ainsi se trouvent assurées une filtration, une agitation et une aération efficaces de l'eau.

Les animaux ne sont pas nourris pendant l'expérimentation. Ils sont introduits dans l'aquarium dès que le niveau de la contamination de l'eau, après la

chute initiale, s'est stabilisé, phénomène que nous expliciterons plus loin (eau douce : 10 Anodontes d'environ 160 g, en eau de mer : 20 Coques d'environ 4,5 g).

2^o MÉTHODES DE CONTAMINATION ET DE MESURE DE RADIO-ACTIVITÉ

La contamination unique de l'aquarium est faite par aspersion à la surface de l'eau, au moyen d'une seringue, d'une solution de chlorure de caesium 137, de façon à obtenir une activité initiale de deux microcuries par litre ($\approx 4\,440$ désintégrations par minute et par gramme).

FIG. 1. — Evolution de l'activité spécifique de l'eau douce.

Les mesures de radioactivité sont réalisées en comptages gamma au moyen de détecteurs à scintillation à cristal $1\frac{3}{4} \times 2$ inches. (Cristal à puits standard au Laboratoire de Radioécologie Marine et cristal plat au Laboratoire de Radioécologie Continentale).

III - RÉSULTATS

1° EVOLUTION COMPARÉE DE L'ACTIVITÉ SPÉCIFIQUE DE L'EAU

Dans les deux cas, on retrouve, ainsi que nous l'avons précédemment noté, [1], [2], [3], [4], [10], une chute rapide de l'activité de l'eau suivie d'une stabilisation relative : une partie du caesium, en effet, a tendance à se fixer sur les

FIG. 2. — Evolution de l'activité spécifique de l'eau de mer.

particules contenues dans l'eau, de même que sur les parois et sur le « dispositif de filtration » (surtout laine de verre et sable). Comme le montrent les figures 1 et 2, les activités à l'état d'équilibre, le temps pour atteindre cet équilibre et la stabilité de ces valeurs diffèrent dans les deux milieux :

— en eau douce, l'activité se stabilise en 25-30 jours à une valeur moyenne de 70 désintégrations par minute et par gramme ($0,3 \cdot 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$), avec des fluctuations importantes;

— en eau de mer, l'activité se stabilise en 8-10 jours vers 600 désintégrations par minute et par gramme ($2,7 \cdot 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$), avec de faibles fluctuations.

2° EVOLUTION COMPARÉE DE L'ACTIVITÉ SPÉCIFIQUE DES BIVALVES

Ici, comme pour l'eau on remarque une plus grande dispersion des résultats en eau douce qu'en eau de mer. Très rapidement, dès leur introduction dans l'aquarium contaminé, l'activité des mollusques augmente. Cependant (fig. 3, 4,

FIG. 3. — Evolution de l'activité spécifique de la coquille et de la chair des Anodontes en fonction du poids frais.

5 et 6), cette augmentation est un peu plus rapide chez les Coques (eau de mer) que chez les Anodontes (eau douce) : les Coques ont atteint leur activité maximale en 17 jours pour la chair et 10 jours pour la coquille, alors que pour les Anodontes, la coquille atteint un maximum vers 40 jours et la chair continue à se contaminer après 84 jours d'exposition.

Ces résultats, exprimés parallèlement en activité par gramme de poids sec et par gramme de poids frais, sont résumés dans le tableau 1.

TABLEAU 1

(LES RÉSULTATS DÉTAILLÉS PEUVENT ÊTRE CONSULTÉS DANS LES TABLEAUX 3 ET 4)

	Activités spécifiques en désintégrations par minute et par gramme (valeurs extrêmes)	Activités spécifiques en désintégrations par minute et par gramme (valeurs extrêmes)
Anodontes (chair)	1 000 à 2 000	10 000 à 20 000
Anodontes (coquille)	3 000 à 5 000	3 000 à 5 000
Coques (chair)	5 000 à 6 000	30 000 à 50 000
Coques (coquille)	300 à 500	300 à 500

FIG. 4. — Evolution de l'activité spécifique de la coquille et de la chair des Coques en fonction du poids frais.

3° FACTEURS DE CONCENTRATION

Le facteur de concentration est une donnée qui paraît commode pour exprimer l'accumulation d'un radionucléide par un organisme aquatique.

$$F.C. = \frac{\text{Activité spécifique de l'échantillon}}{\text{Activité spécifique de l'eau}}$$

FIG. 5. — Evolution de l'activité spécifique de la coquille et de la chair des *Anodonta* en fonction du poids sec.

Deux expressions en sont données, en considérant soit le poids sec, soit le poids frais de l'échantillon.

Les valeurs des facteurs de concentration sont résumées dans le tableau 2.

TABLEAU II

(LES RÉSULTATS DÉTAILLÉS PEUVENT ÊTRE CONSULTÉS DANS LES TABLEAUX 3 ET 4)

	F.C. calculé en fonction du poids frais (moyenne)	F.C. calculé en fonction du poids sec (moyenne)
Anodontes (chair)	30	300
Anodontes (coquille)	60	60
Coques (chair)	10	60
Coques (coquille)	1	1

FIG. 6. — Evolution de l'activité spécifique de la coquille et de la chair des Coques en fonction du poids sec.

TABLEAU III
RÉSULTATS GÉNÉRAUX EN MILIEU DULCICOLE

Temps/jours depuis contamination	A.S. eau	Anodontes : chair				Anodontes : coquille			
		A.S.-P.F.	A.S.-P.S.	F.C.-P.F.	F.C.-P.S.	A.S.-P.F.	A.S.-P.S.	F.C.-P.F.	F.C.-P.S.
1	1 550								
2	330								
4	230								
5	190								
11	200								
17	160								
30	110	510	4 490	1,9	16,9	1 840	1 920	6,9	7,2
37	155								
40	57	1 390	10 890	12,7	99	3 230	3 280	29,4	29,8
48	60	1 020	15 370	10,2	154	3 360	3 440	33	34
55	120	1 090	10 770	11,5	113	5 100	5 250	53,7	55,3
59	90								
63	80								
69	75	1 670	19 830	22,2	264	5 720	6 100	76,3	81
79		1 730	22 710	35	454	3 770	3 970	75	79
89	35	1 020	13 310	12,7	166	4 500	4 670	56,2	58,3
108	45								
111	90	2 260*	22 460*	28,2	280	2 790*	3 000*	34,9	37,5

* Moyenne sur 3 individus.

A.S. = Activité spécifique (désintégrations par minute et par gramme)

F.C. = Facteur de concentration

P.F. = Poids frais

P.S. = Poids sec

TABLEAU IV
RÉSULTATS GÉNÉRAUX EN MILIEU MARIN

Temps/jours depuis contamination	A.S. eau	Coques : chair				Coques : coquille			
		A.S.-P.F.	A.S.-P.S.	F.C.-P.F.	F.C.-P.S.	A.S.-P.F.	A.S.-P.S.	F.C.-P.F.	F.C.-P.S.
7	737								
15	711	3 510	19 260	4,9	26,9	360	385	0,5	0,54
24	661	2 090	11 465	3,1	17	780	840	1,17	1,26
31	640	5 800	31 850	9	49,7	440	475	0,68	0,73
38	642	5 330	29 280	8,3	45,5	305	325	0,47	0,5
57	615	6 295	34 560	10,2	56	330	355	0,53	0,57
76	575	5 670	31 100	9,8	54	260	280	0,45	0,48
98	584	6 530*	35 840*	10	61,3	320*	345*	0,54	0,59

* Moyennes sur 6 individus.

A.S. = Activité spécifique (désintégrations par minute et par gramme)

F.C. = Facteur de concentration

P.F. = Poids frais

P.S. = Poids sec

IV - DISCUSSION

1° ACTIVITÉS SPÉCIFIQUES

La première grande divergence entre les résultats des domaines dulcicole et marin réside dans la différence importante entre les activités spécifiques de l'eau. Pour une même contamination initiale de deux microcuries par litre, on obtient, à l'équilibre relatif qui suit la brusque décroissance des premiers jours, une activité spécifique de 9 à 10 fois plus élevée pour l'eau de mer que pour l'eau douce. En milieu dulcicole, l'intensité de la fixation du caesium par le matériau constitutif du filtre paraît maximale. Il semble que dans le milieu marin une compétition existe dans la fixation du radionucléide, les ions présents pouvant saturer les éventuels sites de fixation et d'adsorption.

Cette différence subsiste en ce qui concerne les activités des parties molles : les chairs de Coques sont plus contaminées que celles des Anodontes, d'un facteur 3 à 5 en poids frais et 2 à 3 en poids sec. Pour les parties molles, la fixation relève de processus métaboliques. Elle est fonction du métabolisme et des échanges osmotiques entre l'eau et l'animal. Ces échanges s'effectuent en particulier entre les ions caesium et potassium.

Par contre pour les coquilles, la fixation est beaucoup plus importante chez l'Anodonte que chez la Coque, les activités spécifiques étant ici dans un rapport 10. Contrairement aux parties molles, la coquille ne retient le caesium 137 que par des phénomènes passifs d'adsorption. La différence observée peut être expliquée ici encore par un phénomène de compétition ionique, plus important en eau de mer qu'en eau douce, ce qui favorise une plus grande fixation par la coquille du Mollusque dulcicole.

2° FACTEURS DE CONCENTRATION

Les facteurs de concentration résultant du rapport des activités spécifiques, dont nous venons de décrire les variations, représentent assez bien le pouvoir d'accumulation à un instant donné, mais ils ne peuvent rendre compte exactement de l'évolution du phénomène de fixation, depuis l'introduction du radionucléide dans l'eau de l'aquarium jusqu'à sa fixation à l'équilibre par l'organisme. Notons cependant que les chairs d'Anodonte présentent un facteur de concentration 3 à 5 fois plus élevé (selon l'expression en poids frais ou en poids sec) que celui des Coques, et que, pour les coquilles, le facteur de concentration est 60 fois plus élevé chez l'Anodonte.

Nos résultats obtenus en milieu marin et exprimés en termes de facteur de concentration sont en bonne concordance avec ceux de BRYAN [5] et [6] (*Mytilus edulis* : muscle adducteur : 7 à 8, pied : 12, coquille : très faible), de HIYAMA [12] et [13] (*Venerupis philipparum* : muscle adducteur : 8,6), de POLIKARPOV (d'après plusieurs auteurs) [14] (*Mytilus galloprovincialis* : coquille : 0 et tissus mous : 10). De même, la concordance avec nos précédents travaux concernant les Mollusques [2] et [3] est satisfaisante (*Chlamys opercularis* : chair 8 à 14, coquille 0 à 0,7; *Tapes sp.* : chair 11, coquille 0,9; *Cardium edule* : chair 10, coquille 0,3; *Mytilus*

edulis : chair 10, coquille 0,3 à 0,9. (Rappelons qu'ici ces facteurs de concentration expriment le rapport de l'activité spécifique de l'animal *par gramme de poids frais* à celle de l'eau.)

En eau douce, les résultats exprimés en termes de facteurs de concentration que nous obtenons concordent avec nos précédentes expériences [4] et [10] (*Unio requieni* : chair 213, coquille 10; pour *Margaritana margaritifera* : chair 321, coquille 9, animal entier 38). TIMOFEYEV RESOVSKAYA [16] trouve une valeur de 90 pour l'animal entier chez *Anodonta cellensis* (les facteurs de concentration exprimant ici le rapport de l'activité spécifique de l'animal *par gramme de poids sec* à celle de l'eau). Dans son étude sur l'accumulation du caesium 137 par les Invertébrés euryhalins, BRYAN [6] note une différence plus grande chez *Potamopyrgus jenkinsi* (Mollusque Gastéropode), puisque les facteurs de concentration s'échelonnent entre 3,4 pour l'eau de mer et 225 pour l'eau saumâtre ne contenant que 0,1 % d'eau de mer. WOLFE et COBURN [17] notent pour *Rangia cuneata* (Mollusque Lamellibranche euryhalin) des valeurs de facteur de concentration échelonnées de 5,26 pour une salinité de 20 pour mille à 14,5 pour une salinité de 1 pour mille (à 15 °C).

Il existe donc un processus général de contamination des bivalves qui est fonction des conditions physiologiques et biologiques particulières. A ce propos, nos résultats confirment les données concernant le métabolisme des substances minérales chez les espèces dulcicoles et marines, les premières présentant, de manière générale, des facteurs de concentration plus élevés, pour les Invertébrés supérieurs et les Vertébrés. En dehors des différences spécifiques, les variations que l'on obtient dans les facteurs de concentration dépendent essentiellement des conditions expérimentales.

V - CONCLUSIONS

1° Le pouvoir d'adsorption du radiocaesium sur la phase en suspension et les parois des aquariums est plus grand en eau douce qu'en milieu marin; les radioactivités spécifiques finales de l'eau douce sont inférieures à celles de l'eau de mer.

2° Les facteurs de concentration, qui permettent de chiffrer le pouvoir d'accumulation du radiocaesium, sont plus élevés en eau douce qu'en milieu marin.

3° Quelque fort que soit ce pouvoir d'accumulation en milieu dulcicole, la faible teneur en caesium disponible résultant du fort pouvoir d'épuration dans ce milieu limite les possibilités d'accumulation à des radioactivités spécifiques inférieures à celles observées en milieu marin, pour une contamination initiale identique.

Cette expérimentation nous a amenés à ne plus considérer seulement le facteur de concentration comme élément d'appréciation d'un éventuel risque sur le plan sanitaire. On doit en effet tenir compte, en outre, du fait qu'en eau douce, une part importante de la radioactivité introduite est retirée du cycle de rétention par les êtres vivants, par intervention de mécanismes « épurateurs » d'ordre physico-chimique. Exprimé en référence à l'activité spécifique globale de l'eau,

le pouvoir de rétention effectif des radionucléides par les espèces dulcicoles devient ainsi nettement plus réduit, inférieur même à celui des espèces marines.

Ces conclusions sont valables dans la mesure où les individus vivent dans une zone où le pouvoir d'épuration a déjà pu s'exercer, c'est-à-dire nettement en aval du point de rejet. Dans le cas contraire, les animaux vivant au voisinage du point de rejet et participant eux aussi de ce fait au système d'épuration, on peut arriver à une situation différente.

Nous nous proposons d'étendre cette expérimentation à d'autres espèces, et notamment à des espèces amphibiotiques ou euryhalines. Par ailleurs, d'autres radionucléides seront utilisés.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] ANCELLIN J., MICHON G. et VILQUIN A. Contaminations expérimentales de crevettes roses par le caesium 137. Rapport CEA-R-2818, 1965.
- [2] ANCELLIN J. et VILQUIN A. Nouvelles études de contaminations expérimentales d'espèces marines par le césium 137, le ruthénium 106 et le cérium 144. *Radioprotection*, 1968, **3** (3), 185-213.
- [3] AVARGUES M., ANCELLIN J. et VILQUIN A. Recherches expérimentales sur l'accumulation des radionucléides par les organismes marins. Colloque International d'Océanographie Médicale, Sept. 1967. *Rev. Intern. Ocean. Méd.*, 1968, **11**, 87-100.
- [4] BOVARD P., FOULQUIER L. et GRAUBY A. Etude de la cinétique et de la répartition du radio-césium chez un bivalve d'eau douce *Unio requieni* (Michaud). 3^e Congrès Intern. des Malacologistes, Vienne, 1-7 sept. 1968. *Malacologia*, 1969, **9**, 65-72.
- [5] BRYAN G.W. The accumulation of radioactive caesium by marine invertebrates. *J. Mar. Biol. Assoc.*, 1963, **43**, 519-539.
- [6] BRYAN G.W. The accumulation of Cesium by brackish water invertebrates and its relation to the regulation of potassium and sodium. *J. Mar. Biol. Assoc.*, 1963, **43** (2), 541-565.
- [7] BRYAN G.W., PRESTON A. and TEMPLETON W.L. Accumulation of radionuclides by aquatic organisms of economic importance in the United Kingdom. In : Disposal of radioactive wastes in ocean and surface waters, Vienne, 16-20 May 1966. *A.I.E.A.*, Vienne, 1966, 623-636.
- [8] CANCIO D., FOULQUIER L. et GRAUBY A. Modalités de la contamination d'un bivalve d'eau douce par le radiostrontium et de sa décontamination : *Anodonta cygnea* (L.). Rapport CEA-R-3421, 1968.
- [9] FONTAINE Y. La contamination radioactive des milieux et des organismes aquatiques. Rapport CEA-R-1588, 1960.
- [10] FOULQUIER L., BOVARD P. et GRAUBY A. Contamination expérimentale de *Margaritana margaritifera* (L.) par le césium 137. C.R. Acad. Sc. Paris, 1967, **265**, 1745-1748.
- [11] GARDER K., SKULBERG O. Radionuclide accumulation by *Anadonta piscinalis* (Nilsson) (*Lamellibranchiata*) in a continuous flow systems. In : Symposium on new methods of determining biogenic and organic substances in water and organic substances, Zivohost, Czechoslovakia, 30 sept.-1^{er} oct. 1963. *Hydrobiol.*, 1965, **26**, 151-169.
- [12] HIYAMA Y. Studies in uptake of radioisotopes by edible marine products. Techn. Rep. on A.I.E.A. Contract, 1962.
- [13] HIYAMA Y. et SHIMIZU M. On the concentration factors of radioactive Cs, Sr, Cd, Zn and Ce in marine organisms. Rec. on Ocean. Works in Japan, 1964, **7**, 43-47.
- [14] POLIKARPOV G.G., 1966, Concentration of radionuclides of the first group of elements in the periodic system. In Radioecology of aquatic organisms, North Holland Publishing Company, Amsterdam, 1966, 61-80.
- [15] SCHELKE L.C., 1964, Ecological implications of fall-out radioactivity accumulated by molluscs. American Association for the advancement of science, 13th annual meeting, Montreal, Conf.-641219-1, 1964.

- [16] TIMOFEYEV-RESOVSKAYA Ye.A. Distribution of radioisotopes in the main components of freshwater bodies (Monograph). Tr. Inst. Biol. Akad. NauK. S.S.S.R., *Ural'skiy Filial*, 1963, **30**, 1-78 (J.P.S.R. 21-816.)
- [16] WOLFE D.A. Seasonal variation of cesium 137 from fall-out in a clam *Rangia cuneata* (Gray). *Nature*, 1967, **215**, 1270-1271.
- [17] WOLFE D.A., COBURN C.B. Jr. Influence of salinity and temperature on the accumulation of cesium 137 by an estuarine clam under laboratory conditions. *Health. Phys.*, 1970, **18**, (5), 499-505.