LES « POLLUTIONS ASSOCIÉES » AUX POLLUTIONS RADIOACTIVES DANS LES ECOSYSTÈMES AQUATIQUES ET IRRIGUÉS *

R. BITTEL **

(Manuscrit reçu le 28 mai 1974)

RÉSUMÉ

Les effluents provenant des installations nucléaires contiennent à la fois des polluants radioactifs et des polluants d'autres types. Dispersés dans le milieu, compte tenu de l'intensification de la mise en valeur, ces effluents se trouvent mélangés à d'autres. Il en résulte des interactions entre polluants radioactifs et divers autres polluants, physiques, chimiques, microbiologiques. L'incidence de ces « polluants associés » sur les transferts des radionucléides dans les systèmes aquifères et les chaînes trophiques aquatiques et irriguées a été analysée grâce à des exemples. L'accent est mis sur l'importance des conceptions précédentes en vue des conditions optimales de mise en valeur des bassins fluviaux ou de zones maritimes littorales. Des recherches fines de toxicologie métabolique aux échelles cellulaire et subcellulaire seraient susceptibles de contribuer à la prévision des conséquences à long terme de pollutions associées de types différents (radioactives et non radioactives) aux très bas niveaux, à la fois pour l'Homme et pour le milieu.

ABSTRACT

Wastes from nuclear installations include radioactive pollutants and other types of pollutants. When dispersed into the environment, interactions occur between the radioactive pollutants and several other physical, chemical or microbiological pollutants. The consequences of these « associated » pollutants on radionuclides transfer into aquifer and aquatic and irrigated trophic chains have been investigated by means of examples. They show out the importance of the above concepts with a view to the best conditions of development of river basins or seashores. Thorough toxicological and metabolic investigations at the cellular and subcellular levels should contribute to forecast long term consequences of associated pollutions of different types (radioactive or not radioactive) at very low levels, both for man and the environment.

* Exposé devant le Groupe de Travail « Pollution de l'environnement de la Société Européenne pour les Méthodes Nucléaires en Agriculture », Grenoble, 23-25 avril 1974.

** Association EURATOM-CEA, Département de Protection, Service de Protection Sanitaire, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, F - 92260 Fontenay-aux-Roses.

I - INTRODUCTION

L'étude du comportement des radionucléides, des points de rejets dans le milieu jusqu'à l'Homme, a fait l'objet de nombreux travaux, dont on ne saurait mésestimer l'intérêt. Il ne faut cependant pas oublier que la pollution radioactive n'est qu'un aspect du phénomène complexe de la pollution en général. Il paraît donc légitime d'envisager les transferts des radionucléides, en fonction, non seulement des caractéristiques propres du milieu, mais aussi en fonction de ses modifications sous l'effet de l'ensemble des autres pollutions.

Dans toutes les installations de quelque importance utilisant des radio-isotopes, les effluents radioactifs ont des origines diverses et les radionucléides s'y trouvent sous des états physiques et physico-chimiques variés. D'autre part, les effluents radioactifs proprement dits en provenance d'installations spécialisées, où on utilise réellement des radioisotopes, sont, avant leur rejet, et parfois même avant tout traitement, mélangés et dilués avec des effluents « conventionnels » non radioactifs, mais contenant, par contre, un grand nombre de composants chimiques.

Le développement actuel et prévisible, pour le proche avenir, de l'énergie atomique conduit, d'une part, à une dispersion géographique croissante d'installations nucléaires d'un type donné, d'autre part, à une concentration de plus en plus grande, sur un même site, d'installations nucléaires de caractéristiques variées. Il est enfin de plus en plus rare, en raison de l'industrialisation croissante et, plus généralement, en raison de la multiplicité des activités humaines dans le cadre d'une même région, qu'un écosystème déterminé, une portion d'un fleuve ou d'un lac, un secteur du littoral marin, par exemple, ne reçoive qu'un seul type d'effluent provenant d'une installation déterminée. En général, de tels écosystèmes reçoivent déjà ou recevront des effluents de types très divers, radioactifs ou non, qui agiront sur le milieu de façon très complexe et difficilement prévisible a priori. Si on se limite au cas de rejets d'effluents liquides dans les eaux de surface, on doit reconnaître que les grands fleuves, tels le Danube, le Rhin, le Rhône, les embouchures fluviales et les zones littorales tendent à devenir de vastes collecteurs pour les industries riveraines [1]. Il paraît a priori impossible de traiter les problèmes posés par l'implantation d'une installation nucléaire en un point donné sans tenir compte, et des caractéristiques naturelles du milieu, et des modifications que l'Homme a, consciemment ou non, apporté à ces caractéristiques. On conçoit donc que, dans leurs effets immédiats et retardés, les polluants radioactifs présents dans des effluents ne puissent pas être dissociés d'autres polluants qui les accompagnent ou bien avec lesquels ils sont en présence dans le milieu. C'est de cette constatation qu'est née la notion de « polluants associés » aux polluants radioactifs. On conviendra de regrouper ici sous le terme « polluants associés », l'ensemble des polluants physiques, chimiques, biochimiques et biologiques susceptibles de modifier, dans le milieu physique et chez les organismes, le comportement des radionucléides normalement présents (radioéléments naturels) ou rejetés dans le milieu (radionucléides artificiels).

Le problème est très vaste, puisqu'on peut envisager ici :

- les rejets thermiques,
- les rejets d'acides ou de bases, de sels d'alcalins,
- les rejets de métaux lourds,
- ceux de composés à action complexante directement associés aux radionucléides ou figurant dans divers rejets chimiques non radioactifs,
- ceux de divers composés organiques, de détergents, de pesticides et produits pétroliers, en particulier,
- les rejets de polluants microbiologiques.

II - POLLUTIONS PHYSIQUES ASSOCIÉES

Il est actuellement important d'étudier les conséquences multiples des rejets thermiques, en raison du développement des centrales électriques. Ces rejets peuvent avoir des effets favorables, dans la mesure, notamment, où ils permettent de réchauffer, directement ou indirectement, l'eau destinée à l'élevage d'espèces aquatiques et à l'irrigation. Ils peuvent aussi être à l'origine d'une perturbation des équilibres biologiques naturels et les modifications résultant d'une variation de température des eaux peut retentir d'une façon complexe sur la répartition des radionucléides dans les écosystèmes aquatiques. L'augmentation de température, qui peut être le fait des rejets thermiques, peut avoir un effet direct sur les organismes aquatiques et un effet indirect en modifiant les conditions des biodégradations et des biosynthèses réalisées par les organismes inférieurs [2]. Il est bien connu que de nombreuses réactions chimiques et biochimiques dans l'environnement dépendent de la température. L'activité microbiologique est accrue par une élévation de température, ce qui, par suite, favorise la biodégradation des matières organiques, si les besoins en oxygène peuvent être satisfaits. La disponibilité de l'oxygène peut alors être un facteur limitant et, dans le cas d'un défaut d'oxygène, des composés organiques indésirables s'accumulent dans le milieu. Parmi ces composés, beaucoup, tels les sulfures, les mercaptans, les acides mercaptocarboxyliques, les composés phénoliques ont, comme on le verra plus loin, une action complexante sur les éléments métalliques, et, de ce fait, sont susceptibles de modifier le comportement de divers radionucléides cationiques.

Les phénomènes de toxicité aiguë des polluants chimiques peuvent être accrues par une augmentation de température, mais il semble que cet effet soit quantitativement assez peu important. Par exemple, dans une eau peu minéralisée la toxicité du zinc pour la physe, mesurée par la concentration létale 96 h, est peu modifiée par un accroissement de température de l'eau de 10 °C entre 10 °C et 20 °C [3-4]. On a observé cependant que la toxicité du zinc pour *Nitzschia linearis* augmente dans le rapport de 1 à 3 quand la température de l'eau passe de 22 °C à 28 °C [5]. L'effet d'une augmentation de la température de l'eau sur la contamination des espèces aquatiques est un aspect particulièrement important à une époque où on a espéré utiliser les calories industrielles pour l'aquaculture. On a montré à Ispra que le prélèvement du zinc 65, du plomb 203, du cadmium

109 et du mercure 203 par diverses espèces zooplanctoniques dulçaquicoles était relativement très peu affecté par des variations de l'ordre de 5 °C entre 10 °C et 15 °C (Tableau I) [6].

TABLEAU I

INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LE PRÉLÈVEMENT DU ZINC 65

	Facteur de transfert F *	
	10 °C	15 °C
<i>Daphnia hyalina</i>	80	80
<i>Cyclops abyssorum</i>	110	120
<i>Eudiaptomus padanus</i>	130	130

* Facteur de transfert du milieu 1 au milieu 2 :

$$F = \frac{\text{concentration dans le milieu 2}}{\text{concentration dans le milieu 1}}$$

ou :

$$\frac{\text{activité spécifique du milieu 2}}{\text{activité spécifique du milieu 1}}$$

Des expérimentations réalisées au Centre d'Etudes Nucléaires de Mol en Belgique sur le ruthénium 106 vont dans le même sens, comme en témoigne le tableau II [7].

TABLEAU II

INCIDENCE DE LA TEMPÉRATURE DE L'EAU SUR LE TRANSFERT DU RADIORUTHÉNIUM DE L'EAU AUX ORGANISMES DULÇAQUICOLES (d'après BÉQUÉ *et alii*) [7]

Composés	F de transfert après 5 jours		
	Température	Limnée	Ablette
Trinitratonitrosyl-ruthénium (^{103}Ru)	5 °C	12,2 ± 2,4	0,14 ± 0,12
	10 °C	27,4 ± 3,9	0,31 ± 0,37
	15 °C	20,3 ± 9,2	0,51 ± 0,41
Chlorure de ruthénium (^{103}Ru)	5 °C	35,4 ± 14,8	0,51 ± 0,34
	10 °C	40,0 ± 35,6	0,25 ± 0,09
	15 °C	18,6 ± 2,2	1,40 ± 1,90

III - POLLUTIONS CHIMIQUES ASSOCIÉES

III-1 ACIDES, BASES

Il est clair que le rejet d'acides ou de bases dans un système aquifère peut avoir une incidence directe sur les équilibres naturels : une modification locale de pH peut avoir pour conséquence la création de conditions défavorables, voir abiotiques. C'est, par exemple, le cas de rejets massifs de boues quasi saturées

d'acide sulfurique. Mais, en général, le milieu s'oppose aux variations de pH grâce à son pouvoir tampon. C'est, en particulier, le cas des milieux océaniques, lorsque les conditions de diffusion, donc de dilution, sont normales. Une modification de pH peut avoir des incidences indirectes plus difficiles à évaluer : elle peut être la cause d'une solubilisation ou d'une insolubilisation d'éléments métalliques radioactifs ou non radioactifs. En général, pour tous les radioisotopes importants dans les rejets, une acidification augmente la mobilité chimique. La seule exception à signaler est le cas du molybdène (^{99}Mo), moins mobile chimiquement en milieu neutre ou acide qu'en milieu légèrement alcalin. Il est à souligner que pH et potentiel d'oxydoréduction sont intimement liés et qu'indirectement une variation de pH modifiera le comportement d'éléments plurivalents tels le fer (^{55}Fe et ^{59}Fe) et le chrome (^{51}Cr). Dans des conditions naturelles où les équilibres sont réalisés, les radionucléides présents dans le milieu ont des états physiques et physico-chimiques déterminés par les caractéristiques des éléments correspondants, par les conditions propres aux rejets et par les conditions de milieu. Une acidification tend, en général (sauf pour le molybdène), à diminuer la fraction particulaire et la fraction colloïdale de l'élément en faveur de la fraction soluble.

Il est, d'autre part, clair que toute acidification implique une augmentation de la concentration en anions ; or, ainsi qu'on le verra, la plupart des anions ont un pouvoir complexant, et ce dernier facteur peut modifier, dans une mesure non négligeable, le sort des radionucléides du milieu.

III-2 POLLUTIONS MÉTALLIQUES

Il convient d'abord de rappeler que, parmi les métaux, les uns sont indispensables aux êtres vivants, parce qu'ils déterminent la concentration globale du milieu intérieur ou qu'ils interviennent dans des mécanismes enzymatiques, les autres ne sont pas indispensables et, à toute concentration, ils sont soit indifférents, soit toxiques. Les éléments indispensables peuvent être toxiques à partir de certaines concentrations, mais leur caractéristique biochimique essentielle est de faire l'objet d'une régulation. Les autres éléments ne font l'objet d'aucune régulation directe. Cependant, le caesium, voisin du potassium, et le strontium, voisin du calcium, font l'objet d'une régulation indirecte, respectivement par le potassium et le calcium. Il en résulte deux aspects particulièrement importants :

— L'addition au milieu de l'isotope stable d'un élément régulé diminue l'absorption des radioisotopes de cet élément. Ceci a été montré, en particulier, pour le zinc (Ispra) [8]. L'addition de zinc stable dans l'eau ou dans la nourriture diminue l'intensité de l'absorption du zinc ^{65}Zn par les poissons.

— L'addition de potassium au milieu, et, dans une moindre mesure, de sodium diminue l'absorption du caesium radioactif, alors que l'addition de calcium déprime l'absorption du strontium radioactif.

Le tableau III montre qu'en ce qui concerne divers végétaux dulçaquicoles le facteur de transfert F eau — organismes pour le caesium ^{137}Cs dépend de la concentration des eaux en ions K^+ [9].

TABLEAU III

INCIDENCE DE LA CONCENTRATION EN POTASSIUM DE L'EAU
SUR LES FACTEURS DE TRANSFERT DU CAESIUM 137 DE L'EAU
A DIVERS VÉGÉTAUX AQUATIQUES (d'après BENINSON [9])

	K = 2 ppm	K = 25 ppm	K = 100 ppm
<i>Bacopa</i>	340 ± 55	136 ± 12	47 ± 6
<i>Cabomba</i>	1 043 ± 110	450 ± 66	162 ± 26
<i>Elodea</i>	2 018 ± 235	785 ± 114	347 ± 77
<i>Ceratophyllum</i>	2 050 ± 190	790 ± 71	280 ± 32

Une « régulation de toxicité », très différente de la précédente, peut intervenir : dans ce cas, l'absorption d'un isotope d'un élément biochimiquement important est diminuée par la présence et l'absorption d'un autre élément présent dans le milieu à des concentrations subtoxiques. L'exemple classique est celui de la dépression par le cadmium des niveaux de zinc 65 dans les organismes aquatiques. Des expérimentations réalisées à Ispra sur *Lepomis gibbosus*, la perche-soleil, ont montré que la contamination des poissons par le zinc 65 était fortement abaissée, par rapport aux témoins, chez les organismes préalablement mis en contact pendant une semaine avec une eau contenant 0,04 ppm de cadmium [10] (Tableau IV).

TABLEAU IV

ACTIVITÉS SPÉCIFIQUES EN ^{65}Zn DE *Lepomis gibbosus*
INCIDENCE D'UN PRÉTRAITEMENT PAR LE CADMIUM (pCi par g) [10]

	Poissons témoins	Poissons traités Cd
Muscles	44 ± 5	5,0 ± 0,5
Squelette	76 ± 10	7,0 ± 1,0
Sang	46 ± 3	6,0 ± 0,1
Tractus gastro-intestinal	≈ 250	≈ 50
Ecailles, peau	≈ 200	≈ 30

La teneur des poissons en cadmium stable est augmentée par le prétraitement dans le rapport de 1 à 3 (facteur de transfert pour Cd ≈ 10), la teneur en zinc stable ne paraît pas être modifiée d'une façon significative.

Le rejet dans les systèmes aquifères de composés métalliques toxiques a évidemment une incidence sur la vie de ces systèmes. Les rejets prolongés, continus ou périodiques induisent, à plus ou moins lointaine échéance, des modifications du milieu qu'il est difficile d'apprécier. Ces modifications sont susceptibles d'influer sur le comportement des radionucléides dans ces écosystèmes. On conçoit aisément que la disparition progressive de certaines espèces puisse perturber profondément le transfert des polluants radioactifs, des points de pollution

jusqu'à l'Homme, à travers les chaînes alimentaires. Dans cet ordre d'idées, il est très intéressant de connaître la plus ou moins grande résistance des organismes impliqués dans les chaînes biologiques et l'aptitude de ces organismes à s'adapter aux conditions de pollution. On sait que de nombreux micro-organismes, non seulement s'adaptent bien aux pollutions, mais que certains interviennent dans le « métabolisme » même des métaux lourds dans les eaux, les limons et les sols.

Un aspect très particulier de pollutions métalliques associées aux pollutions radioactives résulte de l'emploi de métaux liquides comme réfrigérants dans les réacteurs rapides. Il est clair que l'utilisation de grandes quantités de sodium pose des problèmes aigus de protection [11 - 12 - 13 - 14] : les feux de sodium entraînent une pollution de l'atmosphère, puis des sols, des eaux et des végétaux : le sodium libéré à l'état de vapeur et d'oxyde subit une hydratation et une carbonatation, si bien qu'à une certaine distance le dépôt se fait à l'état de soude, de carbonate et de bicarbonate. Son incidence sur le milieu ne peut être négligée. Si le sodium brûlé a déjà subi une utilisation en réacteur, la pollution chimique s'accompagne d'une pollution radioactive par ^{22}Na , ^{24}Na , différents produits de fission et par de petites quantités de plutonium.

III-3 COMPOSÉS A ACTION COMPLEXANTE

L'expérience a maintes fois montré que le comportement de nombreux radionucléides dans le milieu dépend de leur état physico-chimique. En particulier on a constaté l'incidence de divers composés à action complexante [15 - 16]. Or, de très nombreux effluents contiennent des quantités relativement importantes de composés à action complexante. Les effluents provenant des installations nucléaires sont parfois très pourvus en tels dérivés, ce qui d'ailleurs pose des problèmes particuliers de traitement pour ces effluents [17].

Ces composés présentent souvent des toxicités non négligeables vis-à-vis des organismes aquatiques : c'est le cas de cyanures, de sulfures, de mercaptans [4], en particulier des mercaptans présents dans les effluents des industries de la pâte à papier. Par leur toxicité, les complexants sont donc parfois susceptibles de modifier les équilibres biologiques des milieux récepteurs et, par suite, le cheminement des autres polluants dans les chaînes alimentaires. Ce fait étant reconnu, le point essentiel, qui va être développé, est celui des phénomènes de complexation proprement dits.

III-3-1 Complexants minéraux

Parmi les complexants minéraux les plus usuels, il faut d'abord citer l'oxygène et l'anion oxyhydre OH^- , puis les ions Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , le groupement NO et l'anion NO_2^- , les anions F^- , CN^- et SCN^- , les anions phosphoriques et polymétaphosphoriques. L'action complexante du nitrosyle NO sur le ruthénium est bien connue, celle des fluorures, cyanures, sulfocyanures, également. Celle de l'anion Cl^- , pour être moins intense, mérite cependant d'être soulignée (Tableau V) [18], en raison de la fréquence des rejets de chlorures et des énormes quantités déversées dans certains fleuves.

TABLEAU V

CONSTANTES DE STABILITÉ DE COMPLEXES CHLORHYDRIQUES
(lg K et lg β) (VALEURS APPROXIMATIVES, 20 °C, FAIBLE FORCE IONIQUE) [18] *

Zn	$K_1 : 0,2; \beta_2 : 0,3$
Cd	$K_1 : 2; K_2 : 0,7; K_3 : -0,2; K_4 : -0,7$
Hg	$K_1 \simeq K_2 : 6,5; K_3 \simeq K_4 : 1$
Pb	$K_1 \simeq K_2 : 1; K_3 : -0,4; K_4 : -1$

* Notations : $ML_n \rightleftharpoons L + ML_{n-1}; K_n = \frac{|ML_n|}{|ML_{n-1}| |L|}$

$ML_n \rightleftharpoons nL + M; \beta_n = \frac{|ML_n|}{|M| |L|^n}$

L'action des chlorures dans les eaux continentales est à confronter avec les phénomènes se produisant aux embouchures fluviales au moment où les eaux douces entrent en contact avec les eaux océaniques. De très nombreuses études ont été réalisées sur ce sujet. EVANS et CUTSHALL [19] ont effectué des mesures sur les produits d'activation rejetés dans la Columbia River au niveau du Centre de Hanford. Ils ont constaté que ^{65}Zn et ^{54}Mn , particuliers dans la rivière étaient partiellement désorbés du substrat solide au niveau de l'embouchure.

Les sulfates, rejetés parfois en grande quantité, ont un effet complexant non négligeable vis-à-vis de certains ions métalliques : zirconium, cérium, uranium et uranyle, thorium, transuraniens. Les polymétaphosphates méritent une attention toute spéciale, car ils ont été et sont encore très utilisés dans différents détergents et produits ménagers. On trouvera dans le tableau VI les constantes de stabilité (lg K_1) des complexes trimétaphosphoriques et tétramétaphosphoriques de quelques métaux [18].

TABLEAU VI

CONSTANTES DE STABILITÉ DE COMPLEXES POLYMÉTAPHOSPHORIQUES
(lg K_1 , $t \approx 20$ °C, FAIBLE FORCE IONIQUE) [18]

	Trimétaphosphate	Tétramétaphosphate
Mg	3,3	5,2
Ca	3,5	5
Sr	3,4	5
Mn	3,6	5,7
Ni	3,2	5
Cu	1,6	3

III-3-2 Complexants organiques

Les composés organiques susceptibles de complexer les radionucléides cationiques sont très nombreux et leur origine est très variée. Les uns sont des compo-

sés naturels, les autres résultent d'apports du fait de l'Homme (complexants « artificiels »).

a) *Complexants organiques naturels*

Il est évidemment impossible de faire la liste de tous les complexants organiques naturels. Les acides fulviques qui prédominent dans les eaux continentales de pH relativement bas complexent un grand nombre d'éléments métalliques usuels (Tableau VII) [20].

TABLEAU VII

CONSTANTES DE STABILITÉ DE COMPLEXES MÉTALLIQUES D'ACIDES FULVIQUES
($\mu = 0,1$; pH = 5) [20] (1 g K)

Cu	4,0	Ca	3,3
Ni	4,2	Zn	3,6
Co	4,1	Mn	3,7
Pb	4,0	Mg	2,1

L'étude de la répartition des radionucléides entre les fractions de la matière organique des sédiments déposés des fleuves dont l'eau comporte beaucoup de calcium montre que la plus grande partie des radionucléides est souvent liée à des composés de faible masse moléculaire (inférieure à 500) [21]. Dans le cas des sédiments du Rhône, seul le zinc 65 parmi les radionucléides envisagés (^{141}Ce , ^{106}Ru , ^{137}Co , ^{60}Co , ^{54}Mn) paraît être lié, pour une proportion importante, à des molécules organiques de masse moléculaire élevée. On conçoit donc l'importance des paramètres favorisant la formation ou le maintien dans le milieu de molécules organiques relativement simples [22]. Parmi ces paramètres, le niveau général de pollution est à retenir en premier lieu, en raison de ses incidences sur la dégradation des matières organiques et, surtout, sur les processus d'humification.

Il faut souligner l'action complexante de certains acides organiques simples qui se forment dans les eaux polluées, par exemple, des acides mercaptocarboxyliques, des acides uroniques ou polyuroniques. Le tableau VIII [23] donne, sinon les valeurs des constantes de stabilité des complexes du nitrosylruthénium avec de tels composés, du moins la valeur approximative de la constante K d'équilibre $\text{RuNO}^{3+} + n\text{X}^{n-} \rightleftharpoons (\text{RuNOX}_n)^{(3-n)+}$, mesurant la stabilité comparée du complexe et du chlorure de nitrosylruthénium.

TABLEAU VIII

STABILITÉ DES COMPLEXES ORGANIQUES DU NITROSYLRUTHÉNIUM (lg K)
(ÉTUDE RÉALISÉE A L'ÉCOLE SUPÉRIEURE DE CHIMIE DE LILLE) [23]

Acide thiomalique	4,2
Acide thioglycolique	7,2
Acide thiolactique	4,5
Acide glycuronique	3,8
Acide galacturonique	5

b) *Complexants organiques artificiels*

Parmi les complexants organiques artificiels les plus importants, il faut citer l'acide éthylène-diamine-tétra-acétique ou EDTA, et l'acide nitrilotriacétique ou NTA, en raison de leurs utilisations très diverses. Deux de leurs emplois méritent particulièrement d'être signalés :

— l'utilisation de l'EDTA dans les opérations de décontamination de pièces métalliques soumises à l'irradiation : les produits d'activation neutronique sont éliminés sous forme de complexes ;

— l'utilisation du NTA, et maintenant de l'EDTA, comme adjuvants dans les produits pour lessive et les détergents en général [24].

Les grandes industries chimiques rejettent des quantités très importantes de composés organiques à actions complexantes. Ainsi l'industrie de la pâte à papier donne des effluents qui, avant décontamination partielle, contiennent de grandes quantités de thiolignines, d'acides lignosulfoniques et résiniques, de phénols, de dérivés divers des hémicelluloses [25]. Outre l'EDTA et le NTA et les acides polymétaphosphoriques déjà signalés, on peut trouver dans les produits détersifs ménagers divers complexants ; on a même proposé l'utilisation de l'acide citrique, malgré son coût relativement élevé.

On trouvera dans le tableau IX les valeurs constantes de stabilité des complexes métalliques du NTA et de l'EDTA [18].

TABLEAU IX

CONSTANTES DE STABILITÉ DE COMPLEXES MÉTALLIQUES DU NTA ET DE L'EDTA
(FAIBLE FORCE IONIQUE, TEMPÉRATURE $\approx 20^\circ\text{C}$) (VALEURS $\lg K_1$)

	NTA	EDTA
Ca	6,4	10,7
Sr	5,0	8,6
Cd	9,5	10,6
Co	10,6	16,2
Cu	12,7	18,8
Fe ³⁺	8,8	14,3
Fe ²⁺	15,9	25
Pb	11,8	18,3
Zn	10,5	16,3

Le pouvoir complexant de certains détergents sulfonés ne peut être négligé à priori.

Dans les pesticides commercialisés, on trouve un certain nombre de composés susceptibles de fournir des complexes avec les métaux lourds : c'est, en particulier, le cas de dérivés carboxyliques, de phénols, de carbamates, de thiocarbamates. Le pouvoir complexant de pesticides organophosphorés et organothiophosphorés solubles dans l'eau ne doit pas être exclu. Appliqués au sol, les pesticides

subissent, plus ou moins rapidement, des transformations diverses sous l'action de facteurs physiques, physico-chimiques et biochimiques et donnent naissance à un grand nombre de composés souvent solubles, qui sont drainés vers les systèmes aquifères et peuvent y complexer les éléments métalliques [26].

Les liquides qui s'écoulent des zones d'épandage de déchets agricoles ont une forte action complexante sur les métaux lourds : TAN *et alii* [27] ont constaté que les composés de faible poids moléculaire fournissent avec le zinc des complexes identiques aux complexes fulviques.

III-3-3 Incidence des phénomènes de complexation

Les phénomènes de complexation ont une très grande incidence sur le transfert des métaux lourds, radioactifs ou non, dans le milieu physique et les chaînes alimentaires de l'homme, comme le montrent les exemples qui vont suivre.

— *Le complexant peut avoir une toxicité propre* et sa présence dans le milieu peut entraîner, à échéance variable, des modifications des équilibres biologiques qui, à leur tour, ont une incidence sur le comportement des radionucléides. Plus que la toxicité aiguë, il faut envisager la toxicité chronique résultant d'apports prolongés ou répétés.

— *Le complexant peut modifier la toxicité de l'élément complexé* et aussi modifier l'incidence des phénomènes de toxicité chimique des métaux lourds. Les exemples sont très nombreux. On peut rappeler ici l'importance des phénomènes d'alkylation et d'arylation sur la toxicité du mercure [28] et, dans une certaine mesure, de l'arsenic [29]. Il importe donc de mettre l'accent sur les paramètres favorisant la formation des espèces chimiques qui passent pour être les plus toxiques, les alkylmercures et les arylmercures, à partir des autres formes, qu'il s'agisse de paramètres microbiologiques (présence de micro-organismes méthylants) ou de paramètres physico-chimiques (présence de donneurs de groupements méthyles, tels les composés méthylsiliciques et méthylplombiques).

— *La complexation modifie les conditions de sorption et accroît la mobilité chimique des radionucléides.*

Des expérimentations d'ordre physico-chimique montrent que la réaction de l'eau des systèmes aquifères de surface avec les radionucléides des effluents peut être variée [30]. La chromatographie sur papier et sur gel de silice montre que la qualité actuelle des eaux brutes des fleuves constitue un paramètre primordial : la charge polluante favorise la mobilité des radionucléides, vers l'aval dans le fleuve, et en profondeur dans les sédiments déposés et les sols irrigués. Il semble que, dans le phénomène global, la complexation par certaines matières organiques, joue un rôle particulièrement important. Ainsi qu'on l'a constaté à la Division de Biologie d'EURATOM à Ispra, la migration du cobalt complexé par l'EDTA dans les rizières irriguées par submersion est supérieure à celle du cobalt non complexé, qu'il s'agisse de migration vers l'aval avec l'eau d'irrigation ou de migration en profondeur dans le sol des rizières [31] (Tableau X).

TABLEAU X
RÉPARTITION DU COBALT ^{60}Co APPORTÉ PAR L'EAU D'IRRIGATION
DANS LE PROFIL DU SOL DE RIZIÈRES EXPÉRIMENTALES
(% DU COBALT TOTAL RETENU PAR LE SOL) [31]

Profondeur	^{60}Co non complexé	^{60}Co complexé
0 - 2 cm	92,1	61,2
2 - 4 cm	3,1	26,2
4 - 6 cm	1,0	11,2
6 - 8 cm	1,6	1,1
8 - 10 cm	2,2	0,5

— La complexation modifie le prélèvement des radionucléides par les organismes aquatiques et les organismes irrigués.

On se bornera ici encore à citer quelques exemples :

• L'addition de NTA et d'EDTA à l'eau déprime la contamination du zooplancton par le zinc ^{65}Zn et le cobalt ^{60}Co , comme le montre le tableau XI [8].

TABLEAU XI
INFLUENCE DE LA PRÉSENCE DES COMPLEXANTS DANS L'EAU
SUR LES FACTEURS DE TRANSFERT DU ZINC ^{65}Zn
ET DU COBALT ^{60}Co CHEZ *Eudiaptomus padanus* (ZOOPLANKTON) [8]

	^{65}Zn	^{60}Co
NTA : 0 ppm	803	3 852
0,5 ppm	159	721
1 ppm	127	278
EDTA : 0 ppm	803	3 852
0,5 ppm	66	558
1 ppm	30	25

• Le tableau XII donne l'incidence de la complexation du cobalt ^{60}Co présent dans l'eau d'irrigation sur le transfert de ce radionucléide de l'eau aux végétaux irrigués par aspersion (expérience réalisée à Cadarache par le Laboratoire de Radioécologie Continentale du C.E.A.) [16]. On remarquera l'influence de la qualité de l'eau d'irrigation : la contamination est, toutes choses égales par ailleurs, plus élevée si on utilise, comme eau d'irrigation, une eau déminéralisée, que si on utilise une eau beaucoup plus minéralisée.

TABLEAU XII
TRANSFERT DU RADIOCOBALT DE L'EAU D'IRRIGATION (ASPERSION)
AUX ORGANES VÉGÉTAUX CONSOMMÉS PAR L'HOMME [16]

	Eau déminéralisée		Eau du Rhône	
	Co	Co-EDTA	Co	Co-EDTA
Haricots - gousses	27,5 ± 0,25	1,57 ± 0,25	0,77 ± 0,25	0,31 ± 0,25
Salades - feuilles	4,93 ± 0,13	1,63 ± 0,13	1,57 ± 0,13	0,81 ± 0,13

• Une expérimentation réalisée à Ispra au Laboratoire de la Division de Biologie d'EURATOM [16] souligne l'incidence d'une contamination des eaux par l'EDTA, antérieurement à leur contamination par le cobalt 60, sur la contamination directe des parties aériennes de végétaux irrigués par aspersion. On constate (tableau XIII) que :

• la contamination des feuilles de tomate est plus grande quand l'eau d'irrigation est de l'eau déminéralisée que lorsque cette eau est de l'eau du Lac Majeur (20 ppm de Ca^{++}),

• que la contamination *antérieure* des eaux par le complexant n'a qu'une faible influence sur la contamination des feuilles lorsqu'on utilise l'eau déminéralisée (faible diminution), mais qu'elle *augmente* la contamination du végétal, lorsqu'on utilise une eau moyennement minéralisée (eau du Lac Majeur). Tout se passe comme si l'EDTA, introduit dans cette eau avant le radiocobalt, répartissait son action complexante sur les divers ions métalliques présents dans l'eau, en fonction des concentrations des différents réactifs et des stabilités des complexes possibles, cette complexation diminuant l'effet concurrentiel d'autres métaux lourds vis-à-vis du radiocobalt. Il doit être clair que l'ensemble des phénomènes de complexation sont régis par les lois des équilibres chimiques. Les résultats obtenus à Nice au CERBOM [32] peuvent s'interpréter par l'existence de tels équilibres : on a constaté, en effet, que, dans le cas de contamination de chaînes biologiques océaniques, le transfert du zinc, du chrome, du plomb, du mercure et du cuivre ne dépendait pas d'une manière significative de l'état physico-chimique des éléments (éléments introduits à l'état ionique ou à l'état complexé

TABLEAU XIII
FACTEURS DE TRANSFERT DIRECT DU RADIOCOBALT DE L'EAU D'IRRIGATION
A LA FEUILLE DE TOMATE EN FONCTION DE LA QUALITÉ DE L'EAU D'IRRIGATION
ET D'UNE CONTAMINATION PRÉALABLE PAR L'EDTA

Concentration de l'eau en EDTA (ppm)	Eau du Lac Majeur	Eau déminéralisée
0	1	4 à 5
1	2 à 3	4
10	2 à 3	3 à 4

avec un très faible excès de complexant. Tout se passe comme si, en présence des grandes quantités d'ions Ca^{++} et Mg^{++} présents dans l'eau de mer, les complexes des métaux lourds étaient décomposés, les différences de stabilité des complexes étant largement compensées par les différences des concentrations en présence.

III-4 POLLUTIONS ORGANIQUES

Les polluants organiques associés aux polluants radioactifs sont très nombreux.

— Il peut s'agir de composés naturels, parfois relativement très simples, résultant de « déviation » du « métabolisme » normal du milieu, sous l'effet de pollutions, par exemple, de divers acides carboxyliques et mercaptocarboxyliques, de mercaptans, d'acides phénols et d'acides fulviques.

— Il peut s'agir de composés artificiels produits par l'homme et rejetés dans le milieu, volontairement ou involontairement : acides organiques, composés organiques simples ou complexes, pesticides et détergents, produits pétroliers.

L'incidence de ces composés sur la pollution radioactive des milieux aquatiques est multiple : phénomène de toxicité directe ou indirecte modifiant les équilibres écologiques et par suite les conditions de transferts des radionucléides, action sur la disponibilité de l'oxygène dans le milieu, complexation des éléments métalliques. On envisagera ici d'abord le cas de deux classes importantes de polluants organiques : les *pesticides* et les *détergents*. Deux remarques préliminaires s'imposent :

- Les composés commercialisés font appel à des combinaisons chimiques diverses ; la toxicité du produit peut donc être le résultat de phénomènes complexes.

- Ces produits subissent, dans le milieu physique et dans le milieu biologique, des séries de transformations dont le résultat est l'apparition dans le milieu de composés dont les caractéristiques physico-chimiques et toxicologiques peuvent être très différentes de celles des produits initiaux [26]. Les problèmes liés à la « filiation » sont infiniment plus complexes pour les polluants organiques, que pour les polluants radioactifs. Par exemple, le parathion (organothiophosphoré) peut donner simultanément :

- par oxydation, du para-oxon (remplacement du soufre par l'oxygène),
- par hydrolyse, de l'acide diéthylthiophosphorique et du p-nitrophénol.

La présence de pesticides dans les eaux peut entraîner des altérations profondes des équilibres naturels des écosystèmes aquatiques. Beaucoup de produits utilisés ne sont pas spécifiques et leur toxicité n'est pas limitée aux espèces à détruire. Les produits de dégradation sont parfois plus toxiques que le produit de départ : c'est, en particulier, le cas du para-oxon, plus toxique que le parathion. Les modifications qui interviennent dans le milieu physique et le milieu vivant sont parfois suffisamment profondes pour avoir une incidence sur les transferts des radionucléides.

Parmi les détergents, ceux dont l'importance est la plus grande sont ceux utilisés au stade de la ménagère, et, parmi eux, les produits pour lessive. Les produits commercialisés associent des détergents proprement dits, des agents de blanchiment qui sont des oxydants (perborate de sodium), des produits fluorescents ajoutant une certaine « brillance » au linge lavé, des adjuvants permettant une bonne efficacité du produit dans les eaux dures et qui, en fait, sont des complexants, enfin des agents de surface.

Les effets sur le milieu aquatique de rejets de détergents sont multiples : phénomènes de complexation, création de conditions eutrophiques, et, par suite, accroissement des besoins en oxygène disponible, ce qui est encore aggravé par une diminution des échanges gazeux atmosphère-eau, toxicité propre, liée souvent à la tensioactivité (les détergents favorisent le franchissement des barrières physiologiques), évolution de la population microbienne. Il faut signaler que les détergents présents dans l'eau ont une incidence sur l'efficacité des stations d'épuration [33]. Un aspect important relatif aux détergents est la notion de biodégradabilité. En ce qui concerne les alkylsulfonates, la toxicité aiguë augmente en général avec la biodégradabilité.

Les *produits pétroliers* sont déversés en grande quantité dans les eaux de surface. Les rejets comprennent des composés de structures chimiques variées, dont certains ont une toxicité propre très élevée (produits aryliques simples ou complexes). Les produits pétroliers sont progressivement dégradés en milieu aquatique, plus particulièrement en milieu marin. Leur oxydation ménagée conduit à la formation de dérivés organiques divers, dont certains ont une action complexante (acides carboxyliques et thiocarboxyliques, phénols). Les métaux lourds associés aux produits pétroliers (tableau XIV) [34] passent dans l'eau à l'état de complexes organiques.

TABLEAU XIV

TENEURS EN MÉTAUX LOURDS ET EN CHLORURES DE PÉTROLES BRUTS IRAKIENS [34]
(en ppm)

V : 1 — 110	As : 4 — 28
Ni : 1 — 26	Mn : 0,02 — 1
Zn : 0,1 — 3	Cl : 0,7 — 77
Hg : 0,05 — 72	

IV - POLLUTIONS MICROBIENNES ASSOCIÉES

La prolifération des micro-organismes dans le milieu a des incidences multiples.

— Elle peut entraîner des phénomènes de toxicité directe vis-à-vis des organismes aquatiques supérieurs dans les chaînes biologiques. Il importe de souligner, que, souvent, les milieux aquatiques se défendent parfois très efficacement contre une prolifération microbienne exogène. C'est, en particulier, le cas des milieux

océaniques. L'action bactéricide de l'eau de mer pourrait d'ailleurs dépendre de la teneur du milieu en certains métaux lourds, en cadmium, particulièrement [35] (inhibition de l'activité antibiotique d'*Asterionella japonica*).

— Elle constitue souvent le premier échelon dans l'incorporation des éléments des eaux : elle peut être un paramètre de décontamination des eaux; elle implique certainement une transformation physico-chimique pour l'élément qui passe de l'état minéral à l'état organominéral.

— Elle est, de ce fait, à la base des transferts des éléments dans diverses chaînes trophodynamiques. Les micro-organismes naturels ou artificiels (apportés par les effluents polluants, présentent vis-à-vis des autres types de pollution des résistances très diverses; leur intervention dans les phénomènes de transfert des radionucléides implique une résistance aux pollutions. En général, la résistance des micro-organismes aux polluants radiochimiques est supérieure à la résistance aux polluants chimiques qui jouent ainsi le rôle de facteur limitant. Après l'étude de la résistance aux antibiotiques, c'est celle de la résistance aux métaux lourds qui semblent avoir retenu le plus l'attention [36]. Les problèmes posés par l'origine, l'acquisition, puis la transmission des facteurs R sont particulièrement importants. Il semble que des gènes différents soient impliqués dans la résistance à chaque métal.

Le rôle indirect de télémediateurs chimiques synthétisés par des organismes marins, en particulier le plancton, doit être signalé. Il semble s'avérer que divers polluants considérés comme polluants associés aux pollutions radioactives interviennent sur l'efficacité de ces télémediateurs [35-37]. Ainsi, les pesticides solubles dans l'eau augmentent l'activité antibiotique d'*Asterionella japonica*, les effluents de céramiques et de papeteries kraft, les effluents provenant de la fabrication de l'oxyde de titane, les ions Cd^{++} la diminuent.

Il faut mettre l'accent sur l'intervention de nombreux micro-organismes dans le comportement pédochimique des métaux lourds dans les eaux, les sols, les sous-sols et les formations géologiques en présence d'eau [38]. Il est clair que les pollutions qui atteindraient les micro-organismes intervenant dans la biogéochimie de l'uranium modifieraient gravement le comportement de ce radio-élément dans les cycles naturels. D'autre part, de nombreux micro-organismes présents dans divers déchets organiques produisent de l'eau oxygénée qui, à son tour, oxyde l'uranium ou le complexe partiellement et, de toute manière, tend à le rendre chimiquement plus mobile.

V - EUTROPHISATION ET POLLUTIONS ASSOCIÉES

La conséquence extrême de la pollution générale d'un milieu est l'absence de vie. Dans ce cas, le système est écologiquement mort et ne peut être directement à l'origine d'aucune contamination de l'Homme par sa chaîne alimentaire. Il va de soi qu'un tel système n'a aucune capacité biochimique pour retenir la pollution qui peut alors s'en échapper et aller ensuite contaminer d'autres milieux en aval.

Une autre conséquence de la pollution est l'eutrophisation, c'est-à-dire l'enrichissement des milieux en substances et éléments nutritifs, permettant le développement massif d'un certain nombre d'espèces. Suivant une conception adoptée par divers auteurs [39] il faut distinguer soigneusement les conditions dystrophiques, conduisant au développement des seules espèces défavorables pour l'Homme ou même à la mort écologique du milieu, des conditions eutrophiques, au sens strict du terme, les composés naturels ou artificiels présents dans le milieu constituant de véritables engrais susceptibles d'améliorer la productivité des chaînes trophiques. Si des radionucléides sont rejetés dans des milieux eutrophiques « au sens positif du terme », ils sont incorporés dans les systèmes biochimiques et édaphiques où ils subissent des complexations, des sorptions par les colloïdes argileux et humiques, des phénomènes variés de dilution chimique pour les éléments stables. On peut concevoir que, dans de telles éventualités, la capacité du milieu pour les pollutions radioactives soit augmentée. Malheureusement, cette « bonne » pollution a des limites, au-delà desquelles l'eutrophisation devient dystrophie : Au-delà de ces limites, les radionucléides accumulés par le milieu peuvent se trouver brusquement libérés et créer des risques pour les utilisateurs du milieu et des milieux en aval.

VI - AMÉNAGEMENT DES SYSTÈMES AQUIFÈRES ET POLLUTIONS ASSOCIÉES

Il devient actuellement de moins en moins fréquent qu'un système aquifère ne reçoive pas de profondes modifications du fait d'aménagements par l'Homme. La question se pose donc d'apprécier en quelle mesure ces aménagements ne modifient pas les conséquences de rejets d'effluents radioactifs. Le problème a un intérêt pratique évident ; il suffit pour s'en convaincre de se remémorer les nombreux aménagements réalisés sur le Bas-Rhône depuis le début du fonctionnement du Centre de Marcoule. Les travaux des chercheurs américains d'Oak-Ridge sur le comportement des radionucléides dans les différents lacs et réservoirs jalonnant la Clinch River et la Tennessee River fournissent des éléments d'information intéressants [40]. Tout se passe comme si les lacs se comportaient comme des bassins de décantation pour les radionucléides particuliers.

VII - CONCLUSIONS

L'étude qui précède montre, à l'aide d'exemples, que le comportement des radionucléides dans les écosystèmes aquatiques et irrigués dépend de la présence ou de l'absence, des concentrations relatives ou de la grandeur de nombreux paramètres qui sont sous la dépendance de la pollution du milieu. Le développement de l'industrie nucléaire, la « miniaturisation » et, par suite, la dispersion

sur le territoire des petites installations utilisant l'énergie nucléaire et produisant des radionucléides dont une partie est évacuée dans le milieu posent des problèmes nouveaux à traiter sur des plans régionaux, internationaux, voire mondiaux.

L'intensification de l'industrie non nucléaire et de l'agriculture, qui recourt de plus en plus à des adjuvants chimiques, conduit à une interpénétration géographique entre les activités nucléaires et d'autres activités et, par suite, à une association géographique des rejets des effluents correspondants. Il en résulte que, sur un plan géographique très large, pollutions radioactives et pollutions non radioactives sont souvent associées. L'étude précédente montre que cette association dans le temps et l'espace de polluants d'ordres différents conduit à une association dans les effets, le comportement des polluants radioactifs dépendant des caractéristiques des pollutions non radioactives. Il ne paraît donc plus possible d'envisager l'étude « radioécologique » d'un site sans envisager, parmi les paramètres du milieu, son niveau de pollution. Il n'est pas aberrant de penser que le facteur limitant, pour des implantations nucléaires dans un bassin fluvial ou sur un littoral océanique, soit représenté par le niveau régional de pollution et que le facteur limitant pour des rejets d'effluents chimiques soit l'implantation, actuelle ou prévue, de nombreuses installations nucléaires impliquant des rejets d'effluents de faible activité.

Les rivages marins sont appelés à recevoir un grand nombre d'installations nucléaires de caractère industriel, en particulier des centrales produisant de l'électricité. Ce sont, par ailleurs, des zones d'élection pour diverses implantations industrielles non nucléaires. On conçoit donc qu'il soit urgent d'harmoniser l'aménagement du littoral, de manière à parvenir au développement maximal, compte tenu des risques qu'encourrait la population du fait de l'association des pollutions et du coût de la protection [41].

Dans l'état présent des connaissances, on peut déjà se faire une idée de la réalité et de l'ampleur du problème de l'« association » de pollutions de types divers. Des progrès sont à attendre de recherches plus approfondies sur les effets de toxicité, à moyen ou long terme, d'association de pollutions de types différents, en vue d'étudier les effets d'additivité, de synergie et d'antagonisme. L'accent doit être mis sur l'intérêt qu'il y aurait à intensifier des recherches fines sur les mécanismes métaboliques et génétiques impliqués. La « Toxicologie Métabolique » telle que la conçoit TREMOLIERES [42] devrait permettre de grands progrès dans le domaine des bases scientifiques des recommandations relatives aux limites de dose. Cette nouvelle discipline pourrait aider à l'évaluation du risque radioactif associé à des risques d'ordre physique et chimique, à des intensités où, sans qu'on constate de lésion, il y a des déséquilibres des métabolismes au niveau des tissus et des cellules et au niveau subcellulaire. On améliorerait ainsi la prévision des conséquences, à long terme, de pollutions radioactives aux très bas niveaux, associées, comme elles le sont dans la réalité, à des pollutions d'autres types, en envisageant non seulement le cas de l'Homme, mais aussi celui des diverses espèces de l'environnement.

RÉFÉRENCES

- [1] BOVARD P. Etude radio-écologique des conséquences des rejets nucléaires dans un bassin fluvial important. Groupe d'Etude Européen de Radioprotection et de Protection de l'environnement, Budapest, 3-7 septembre 1973 - CEA Conf. 2465.
- [2] Federal Water Pollution Control Administration. Industrial waste guide on thermal pollution, U.S. Dept of the Interior, Corvallis (Oregon) (1968).
- [3] CLARK. Thermal pollution and aquatic life. *Scient. Amer.*, **220**, 3 (1969), 19-27.
- [4] WILBER C.G. *The Biological aspects of water pollution*. Springfield (Illinois, USA), C.C. Thomas (1969).
- [5] Federal Water Pollution Control Administration. Report of the Committee on Water Quality Criteria. US Dept of the Interior, Washington (1968).
- [6] SCOPPA M.F., SCOPPA P. In : Association EURATOM - CEA *Niveaux de pollution du milieu ambiant*. Rapport d'activité 1973, en préparation.
- [7] BÉQUÉ H., VAN PUUMBROECK S., JAUMIER J., BITTEL R., VAN DER BORCHT O. Initial biological availability of the heavy metal ruthenium in freshwater environ. *Physiology*, **1** (1971), 37-50.
- [8] Association EURATOM-CEA *Niveaux de pollution du milieu ambiant*. Rapport d'activité 1971. Rapport EUR. 4546 f.
- [9] BENINSON D., VANDER ELST E., CANCIO D. Biological aspects in the disposal of fission products in surface waters — Disposal of radioactive wastes into seas, oceans and surface waters, Vienne, *AIEA* (1966), 337-354.
- [10] MERLINI M., ARGENTESI F., BRAZZELLI A., OREGIONI B., POZZI G. The effects of sublethal amount of cadmium and mercury on the metabolism of zinc 65 by freshwater fish. Commission des Communautés Européennes. La Radioécologie appliquée à la protection de l'homme et de son environnement. Luxembourg, Communautés Européennes, 1972. Rapport EUR. 4806 dfie 1327-1344.
- [11] REIST P.C. Review of the probable characteristics of aerosols resulting from accidental loss of sodium coolant — NYO Report 841 - 18 (1969).
- [12] BAKER L. Jr, ROSE D., MILLER C.E. The liquid — metal fast breeder reactor safety program. — *Nuclear safety*, **11**, 1 (1970) 1-11.
- [13] KAWAHARA S., YUSA H., KAMIYA K., KAWAGUCHI O., FUROSHIMA Y. Behavior of sodium oxide and fission product under sodium pool fire — In : FAUDE D. : *Engineering of fast reactors for safe and reliable operations*. Bonn, Gesellschaft fur Kernforschung, **4** (1973) 1409-1422.
- [14] TADMOR J. Consequences of an accidental release of sodium to the environment from an LMFBR. *Nuclear safety*, **14**, 4 (1973), 324-340.
- [15] BITTEL R., MERLINI M., BÉQUÉ H., BERG A., MYTTENAERE C., RAVERA O., VÉROT J.L., VAN DER BORCHT O. Etude du transfert à l'homme, par ses aliments, des radioisotopes du ruthénium, du cobalt et du zinc rejetés dans les eaux continentales. Commission des Communautés Européennes — La radioécologie appliquée à la protection de l'Homme et de son environnement, Luxembourg (1972), 869-890.
- [16] BITTEL R. Incidence des paramètres physico-chimiques sur la contamination radioactive des écosystèmes irrigués — A.I.E.A., Environmental behaviour of radionuclides released in the nuclear industry, Vienne, *AIEA* (1973), 291-302.
- [17] VEROT J.L., BLUM J.M., HAZERA J., SARFATI R. Etude des problèmes posés par le traitement des effluents contenant des détergents et des complexants. Rapport EURATOM EUR. 4192 f. (1968).
- [18] MARTELL A., SILLEN L.G. *Stability constants*, Londres, The chemical Society, special publication n° 17 (1964).
- [19] EVANS D.W., CUTSHALL N.H. Effects of ocean water river radionuclides. Rapport américain RLO 227 (1972), 12-28.
- [20] SCHNITZER M., HANSEN E.H. Organo metallic interactions in soils : 8. An evaluation of methods for the determination of stability constant of metal fulvic acid complexes. *Soil Sci.*, **109**, 6 (1970), 333-340.

- [21] FAURE J., VIALLET P., GRAUBY A., PICAT P. Complexation entre la matière organique d'un sédiment et certains radioéléments : répartition de ces derniers en fonction de la masse moléculaire des substances organiques — Comptes rendus de l'Académie d'Agriculture de France (1972), 377-383.
- [22] HOOD D.W. Organic matter in natural waters — University of Alaska, Institute of Marine Science, occasional publication, n° 1 (1970).
- [23] Association EURATOM - CEA. Niveau de contamination du milieu ambiant. Rapport d'activité 1970. Rapport EUR. 4700 f.
- [24] O.C.D.E., Direction de l'Environnement. Rapport du Groupe d'Experts sur les détergents, Paris 1973 (document 89.769).
- [25] DONNIER B. Etude de la toxicité d'effluents de papeterie en milieu marin. *Rev. intern. Océanogr. médicale*, 28 (1972), 53-93.
- [26] GOULD R.F. Organic pesticides in the environment. American Chemical Society publications, advances in chemistry series 60 (1966).
- [27] TAN K.H., KING L.D., MORRIS H.D. Complex reactions of zinc with organic matter extracted from sewage sludge. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, 35 (1971), 748-752.
- [28] BONEY A.D., CORNER E.D.S., SPARROW B.W.P. The effects of various poisons on the growth and viability of sporelings of the red alga *Plumaria elegans*. *Biochem. Pharmacology*, 2 (1959), 37-49.
- [29] WOOD J.M. Metabolic cycles for toxic elements in aqueous systems. *Rev. intern. Océanogr. médicale*, 31-32 (1973), 7-16.
- [30] SAAS A., GRAUBY A. Mécanismes de transfert dans les sols cultivés des radionucléides rejetés par les centrales électro-nucléaires dans le système fleuve — sol irrigué — nappe. AIEA. Environmental behaviour of radionuclides released in the nuclear industry. Vienne, AIEA (1973), 255-269.
- [31] BITTEL R., MERLINI M., MYTTENAERE C., RAVERA O. Etude des paramètres du transfert du radiocobalt dans les écosystèmes continentaux aquatiques et irrigués. Rapport C.E.A. P. 4157 (EUR. 4628 f.) (1971).
- [32] AUBERT M., BITTEL R., LAUMOND F., ROMEO M., DONNIER B., BARELLI M. Utilisation d'une chaîne trophodynamique de type pélagique pour l'étude des transferts des polluants métalliques. *Rev. intern. Océanogr. médicale*, 28 (1972), 27-52.
- [33] MAES M. La station d'épuration connaît ses réfractaires. Influence des composés toxiques à action persistante. *Nuisances et environnement*, 28 (1974), 28-33.
- [34] AL SHAHRISTANI H., AL ATTIFA M.J. Trace elements in araki oils and their relationship to the origin and migration of these oils. Rapport irakien IAEC. PH. 16 (1973).
- [35] AUBERT M., PESANDO D. Médiateurs biochimiques et équilibre biologique de la mer. 6^e colloque international d'océanographie médicale, Porto Roz (Yougoslavie), septembre 1973, à paraître dans *Rev. intern. océanogr. médicale*.
- [36] SMITH D.H. R factors mediate resistance to mercury, nickel, and cobalt. *Science*, 156 (1967), 1114-1115.
- [37] AUBERT M., GAUTHIER M., DONNIER B., PESANDO D., PIACEMIA J.M., BARELLI M. Effets des pollutions chimiques vis-à-vis de télémediateurs intervenant dans l'écologie micro-biologique et planctonique en milieu marin. *Rev. intern. océanogr. médicale*, 28 (1972), 129-166.
- [38] ZAJIC J.B. *Microbial biogeochemistry*. New York, Academic Press (1969).
- [39] PAOLETTI A. Sources de pollution et auto-épuration de la mer dans ses aspects positifs et négatifs. Actes du 5^e colloque international d'océanographie médicale - Messine - Libreria Bonanzinga (1973), 259-272.
- [40] PICKERING R.J., CARRIGAN P.H. Jr, TAMURA T., ADEE H.H., BEVERAGE J.W., ANDREW R.W. Jr. Radioactivity in bottom sediment of the Clinch and Tennessee Rivers — Disposal of radioactive wastes into seas, oceans and surface waters. Vienne, AIEA (1956), 57-88.
- [41] AUBERT M., AUBERT J. Pollutions marines et aménagement des rivages. *Rev. intern. Océanogr. médicale*, supplément (1973).
- [42] Comité Contamination des chaînes biologiques. Haut-Comité de l'environnement. Journées des 23-25 janvier 1973 sous la direction de M. le Professeur TREMOLIERES, Le Vésinet.