

COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**DONNÉES EXPÉRIMENTALES SUR LES FORMES
PHYSICO-CHIMIQUES DE L'ANTIMOINE 125 ET
DE L'ARGENT 110m ET SUR LEURS TRANSFERTS
A UN POISSON DULCAQUICOLE, LA CARPE.**

par

*Jean-Pierre BAUDIN, Jacqueline GARNIER,
Alain LAMBRECHTS et Luc FOULQUIER*

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire

Centre d'Études Nucléaires de Cadarache

RAPPORT CEA-R-5476

CLASSIFICATION DES RAPPORTS, NOTES ET BIBLIOGRAPHIES CEA

(Classification du système international de documentation nucléaire INIS
de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique)

A11 Physique théorique générale et physique mathématique	C60 Radiologie et médecine nucléaire
A12 Physique atomique et physique moléculaire	D10 Isotopes et sources de rayonnements
A13 Physique de l'état solide et physique des fluides	D20 Applications des isotopes et des rayonnements
A14 Physique des plasmas et réactions thermonucléaires	E11 Thermodynamique et écoulement des fluides
A15 Astrophysique et cosmologie, rayonnement cosmique	E13 Structures mécaniques et équipements
A16 Conversion directe d'énergie	E14 Explosions nucléaires
A17 Physique des basses températures et cryogénie	E15 Manutention des matériaux radioactifs
A20 Physique des hautes énergies	E16 Accélérateurs
A30 Physique neutronique et physique nucléaire	E17 Essais des matériaux
B11 Analyse chimique et isotopique	E20 Réacteurs à fission (généralités)
B12 Chimie minérale, chimie organique et chimie-physique	E30 Types spécifiques de réacteurs à fission et centrales associées
B13 Radiochimie et chimie nucléaire	E40 Instrumentation
B14 Chimie des rayonnements	E50 Gestion des déchets
B16 Combustibles nucléaires	F10 Sociologie et sciences économiques
B22 Métaux et alliages	F20 Droit
B23 Céramiques et cermets	F30 Documentation nucléaire
B24 Autres matériaux	F40 Garanties nucléaires et contrôle de vérification
B30 Science de la terre	F50 Méthodes mathématiques et codes pour ordinateur
C10 Tous les effets et aspects variés de l'irradiation externe en biologie	F60 Divers
C20 Effets et cinétique des radioisotopes	
C40 Sciences de la vie appliquées	
C50 Santé, radioprotection et environnement	

Rapport CEA-R-5476

Cote-matière de ce rapport : C20

MOTS CLEFS (extraits du thesaurus INIS)

en français

ANTIMOINE 125
ARGENT 110
ETAT CHIMIQUE
EAU DOUCE
SEDIMENTS
POISSONS
ABSORPTION DES RADIONUCLEIDES
CINETIQUE DES RADIONUCLEIDES
DISTRIBUTION DANS LES TISSUS
EXCRETION
DEMI-VIE BIOLOGIQUE
CHAINES ALIMENTAIRES
CONCENTRATION RADIOECOLOGIQUE

en anglais

ANTIMONY 125
SILVER 110
CHEMICAL STATE
FRESH WATER
SEDIMENTS
FISHES
UPTAKE
RADIONUCLIDE KINETICS
TISSUE DISTRIBUTION
EXCRETION
BIOLOGICAL HALF-LIFE
FOOD CHAINS
RADIOECOLOGICAL CONCENTRATION

- Rapport CEA-R-5476 -

Centre d'Études Nucléaires de Cadarache
Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département d'Études et de Recherches en Sécurité
Service d'Études et de Recherches sur l'Environnement
Laboratoire de Radioécologie des Eaux Continentales

**DONNÉES EXPÉRIMENTALES SUR LES FORMES
PHYSICO-CHIMIQUES DE L'ANTIMOINE 125 ET
DE L'ARGENT 110m ET SUR LEURS TRANSFERTS
A UN POISSON DULCAQUICOLE, LA CARPE.**

par

***Jean-Pierre BAJDIN, Jacqueline GARNIER,
Alain LAMBRECHTS et Luc FOULQUIER***

*Cette étude a été réalisée dans le cadre
d'un contrat passé entre le CEA (DERS/SERE)
et EDF (Direction de l'équipement -
Département Sites - Environnement - Information)
Contrats N° E 3431 et 3551.*

- MARS 1989 -

CEA-R-5476 BAUDIN Jean-Pierre, GARNIER Jacqueline, LAMBRECHTS Alain et
FOULQUIER Luc.

**DONNEES EXPERIMENTALES SUR LES FORMES PHYSICO-CHEMIQUES DE
L'ANTIMOINE 125 ET DE L'ARGENT 110m ET SUR LEURS TRANSFERTS A UN POISSON
DULCAQUICOLE, LA CARPE**

Resume. - Le ^{125}Sb reste en solution dans l'eau mais peut se fixer sur le sediment. Il n'apparaît pas de forme colloïdale et quasiment pas de forme particulaire, même en présence d'organismes vivants. La quasi totalité du radionucléide est retenue par la résine anionique.

La bioaccumulation à partir de l'eau du ^{125}Sb par la carpe est très faible, la valeur maximale du facteur de concentration étant de l'ordre de 0,15.

Le $^{110\text{m}}\text{Ag}$ a une très forte tendance à s'adsorber sur tous les sites disponibles. Il y a formation de complexes colloïdaux et apparition de formes particulaires abondantes. Les formes dissoutes vraies représentent moins de 50% de la radioactivité totale et la rétention la plus forte a lieu sur la résine anionique.

La bioaccumulation par la carpe de l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ à partir de l'eau correspond à un facteur de concentration maximal de 140. L'accumulation du radionucléide à partir de la nourriture montre que la voie trophique peut être aussi importante que la voie directe dans le transfert aux poissons.

1989

82 P.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

CEA-R-5476 BAUDIN Jean-Pierre, GARNIER Jacqueline, LAMBRECHTS Alain et
FOULQUIER Luc.

**EXPERIMENTAL DATA RELATED TO PHYSICO-CHEMICAL FORMS OF ANTIMONY
125 AND SILVER 110m AND TO THEIR TRANSFERS TO A FRESHWATER FISH, THE
CARP.**

Summary. - The ^{125}Sb remains dissolved in the water but may be partly adsorbed on the sediment. No particulate and colloidal forms appear in the water, even in the presence of living organisms. The major part of the dissolved ^{125}Sb is fixed by anionic resin.

^{125}Sb accumulation by carp from water is a very weak phenomenon which results in a concentration factor of approximatively 0.15.

The best part of the $^{110\text{m}}\text{Ag}$ brought in the water is rapidly adsorbed on all available surfaces and colloidal and particulate forms develop in the medium. The real dissolved forms represent less than 50% of the water radioactivity and are essentially retained by anionic resin.

The bioaccumulation, from water, of the $^{110\text{m}}\text{Ag}$ by the carp results in a maximal concentration factor of about 140. The accumulation from food shows that trophic pathway may be as important as direct pathway in the transfer to fish.

1989

82 P.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

SOMMAIRE

	<u>Pages</u>
INTRODUCTION	1
1. FORMES PHYSICO-CHIMIQUES DE L'ANTIMOINE 125 ET DE L'ARGENT 110m EN MILIEU EXPERIMENTAL	3
1.1 Matériel et méthodes	3
1.2 Résultats et discussions	8
1.2.1 L'antimoine 125	8
1.2.1.1 Formes physico-chimiques du radioélément lors de la contamination de l'eau	8
1.2.1.2 Evolution des formes de l'antimoine 125 en l'absence de sédiment	8
1.2.1.3 Evolution des formes de l'antimoine 125 en présence de sédiment	9
1.2.2 L'argent 110m	10
1.2.2.1 Forme physico-chimique du radioélément lors de la contamination de l'eau	10
1.2.2.2 Evolution de la radioactivité de l'eau brute	11
1.2.2.3 Evolution des formes dissoutes	11
1.2.2.4 Evolution des formes colloïdales et particulaires	12
1.2.2.5 Transfert au sédiment	12
1.2.2.6 Discussion	13

2.	BIOACCUMULATION PAR LA VOIE DIRECTE ET ELIMINATION DE L'ANTIMOINE 125 ET DE L'ARGENT 110m PAR <i>Cyprinus carpio</i>	31
2.1	L'antimoine 125	31
2.1.1	Matériel et méthodes	31
2.1.2	Résultats et discussion	32
2.1.2.1	Phase d'accumulation du ^{125}Sb	32
2.1.2.1.1	Cinétique de l'accumulation du ^{125}Sb	32
2.1.2.1.2	Concentration et distribution du ^{125}Sb dans les organes de la carpe ..	33
2.1.2.2	Phase d'élimination du ^{125}Sb	33
2.1.2.2.1	Cinétique de l'élimination du ^{125}Sb ..	33
2.1.2.2.2	Concentration et distribution du ^{125}Sb dans les organes de la carpe ..	34
2.2	L'argent 110m	34
2.2.1	Matériel et méthodes	34
2.2.2	Résultats et discussion	35
2.2.2.1	Phase d'accumulation de ^{110m}Ag	35
2.2.2.1.1	Cinétique de l'accumulation du ^{110m}Ag	35
2.2.2.1.2	Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe .	36
2.2.2.2	Phase d'élimination du ^{110m}Ag	36
2.2.2.2.1	Cinétique de l'élimination du ^{110m}Ag	36
2.2.2.2.2	Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe .	37

3. BIOACCUMULATION PAR LA VOIE TROPHIQUE ET ELIMINATION DE L'ARGENT 110m PAR <i>Cyprinus carpio</i>	54
3.1 Matériel et méthodes	54
3.2 Résultats et discussion	55
3.2.1 Phase d'accumulation du radionucléide	55
3.2.1.1 Cinétique de l'accumulation	55
3.2.1.2 Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe	56
3.2.2 Phase d'élimination du radionucléide	57
3.2.2.1 Cinétique de l'élimination	57
3.2.2.2 Concentration et répartition du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe	57
3.2.3 Estimation de l'importance relative de l'eau et de la nourriture dans la bioaccumulation du ^{110m}Ag par <i>Cyprinus carpio</i>	58
CONCLUSION	71
BIBLIOGRAPHIE	74

INTRODUCTION

Le développement des réacteurs à eau pressurisée et le vieillissement des installations entraînent l'apparition de nouveaux nucléides dans les effluents rejetés par les centrales. C'est le cas notamment des argents 110 et 110m et des antimoines 124 et 125. Ces nucléides peuvent représenter plus de 10 % de la radioactivité totale, hors tritium, des effluents (LUIKX et FRASER, 1983 ; PICAT et al., 1986 ; PICAT 1987).

Dans l'eau des rivières, l'argent se présenterait sous forme colloïdale ou particulaire, tandis que l'antimoine resterait sous forme soluble (COUGHTREY et al., 1985). L'argent 110m n'a jamais été détecté dans l'eau filtrée du Rhône mais uniquement associé aux particules en suspension. De 1980 à 1986, il a été souvent mesuré dans les sédiments ($6,3 \pm 2,1$ Bq.Kg⁻¹ sec), dans les végétaux ($5,4 \pm 2,7$ Bq.Kg⁻¹ sec), et dans les poissons ($0,21 \pm 0,17$ Bq.Kg⁻¹ frais), en aval du complexe Marcoule-Tricastin. Au cours de cette même période, l'antimoine 125 a souvent été mesuré dans l'eau filtrée du fleuve avec une concentration de 30 ± 10 mBq.l⁻¹. Les concentrations étaient de 14 ± 7 Bq.Kg⁻¹ sec dans les sédiments et de 20 ± 10 Bq.Kg⁻¹ sec dans les végétaux aquatiques. Après l'accident de Tchernobyl, l'Ag-110m et le Sb-125 ont été détectés dans des cours d'eau européens et en particulier dans le Rhône, avec des concentrations plus élevées qu'avant le 26 Avril 1986.

Une analyse bibliographique révèle l'absence quasi-totale de données concernant les processus de fixation de ces radionucléides dans les organismes ducaquicoles. Ainsi dans une synthèse bibliographique sur les poissons d'eau douce en général, COUGHTREY et al. (1983 et 1984) citent des facteurs de concentration de 2,3 pour le radioargent (valeur expérimentale) et compris entre 0,1 et 1000 pour le radioantimoine. Nos propres mesures suggèrent pour les poissons du Rhône des facteurs de concentration de l'ordre de 500 pour l'Ag-110m et < 10 pour le Sb-125. Une telle dispersion des données rend difficile la prévision des conséquences sanitaires d'une dissémination de ces radionucléides dans l'environnement, d'autant plus que leurs caractères physico-chimiques ne sont que très imparfaitement connus.

C'est en raison de ces importantes lacunes que la Direction de l'Équipement d'Électricité de France nous a confié diverses études expérimentales sur l'Argent 110m et l'Antimoine 124. Ce dernier n'étant pas commercialisé, les expériences ont été menées avec le Sb-125 étant donné qu'il n'y a aucune différence de comportement entre les isotopes de l'antimoine. Le ^{125}Sb et le $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ont été fournis par l'Office des Rayonnements Ionisants (ORIS).

Dans ce rapport sont regroupés les résultats correspondant à l'exécution de deux contrats successifs (E3431 et 3551). Les expériences réalisées avec l'Argent 110m et l'Antimoine 125 portent sur leurs formes physico-chimiques en milieu expérimental et leur transfert entre l'eau et le sédiment. Une deuxième partie du travail est consacrée à la bioconcentration et à l'élimination des deux radionucléides par un poisson, la carpe commune (*Cyprinus carpio*). Ces études de transfert, qui permettent de calculer les facteurs de concentration et les périodes biologiques ont été complétées par une évaluation de la répartition tissulaire des deux radionucléides. Dans une troisième partie, les différents paramètres relatifs à l'accumulation par la voie trophique et à l'élimination de l'Argent 110m ont été également déterminés.

1. FORMES PHYSICO-CHEMIQUES DE L'ANTIMOINE 125 ET DE L'ARGENT 110m EN MILIEU EXPERIMENTAL

1.1 Matériel et méthodes

L'évolution des formes physico-chimiques des deux radionucléides dans l'eau a été suivie dans quatre situations expérimentales : l'eau seule, l'eau avec des poissons, l'eau sur un lit de sédiment et l'eau après la mise en suspension et la redéposition du sédiment contaminé. Les études ont été réalisées avec de l'eau de source ainsi que de l'eau du Rhône prélevée comme le sédiment dans le port de Cruas, situé à environ 1 Km en amont de la centrale (tableau 1, 2 et 3). Des aquariums en plexiglas, contenant 5 litres d'eau aérée par un diffuseur d'air, ont été utilisés.

L'influence de la présence d'organismes vivants a été testée avec 5 carpes pesant environ 4 g, laissées à jeun. Le sédiment d'un poids humide de 1200 g formait une couche de l'ordre de 3 cm d'épaisseur. Régulièrement des échantillons de 50 ml d'eau sont prélevés et filtrés sur membranes de $0,45 \mu\text{m}$ pour collecter les formes particulières (Fp) puis sur membranes de $0,025 \mu\text{m}$ afin de séparer les formes colloïdales (Fc). La percolation du filtrat sur un ensemble de colonnes contenant successivement une résine échangeuse de cations, une résine échangeuse d'anions et un adsorbant non polaire permet de distinguer les diverses formes ioniques des radionucléides restant en solution. L'ensemble de ces opérations est schématisé dans la figure 1. Dans les tableaux, la mention C⁺ correspond au radionucléide retrouvé dans la résine cationique, A⁻ au radionucléide trouvé dans la résine anionique et N au radionucléide trouvé dans l'adsorbant. La contamination de l'eau par le Sb-125 est obtenue par l'ajout d'une solution de SbCl₃ dans HCl 2N et correspond à une radioactivité de l'ordre de 170 Bq/ml. L'Ag-110m est introduit dans l'eau sous forme d'une solution d'AgCN dans NH₄OH 1N et la radioactivité initiale est de 200 Bq/ml.

TABLEAU 1
Caractéristiques physicochimiques des eaux
utilisées dans les expériences

Caractéristiques	Eau du Rhône	Eau de source
pH	7,65	7,10
MES (mg.l ⁻¹)	2,40	0,20
<u>Cations</u> (mg.l ⁻¹)		
Ca ²⁺ "	88,85	97,20
Mg ²⁺ "	9,10	19,50
Na ²⁺ "	21,10	8,90
K ⁺ "	2,10	0,90
NH ₄ ⁺ "	0,60	< 0,10
Fe ²⁺ "	< 0,02	< 0,02
Mn ²⁺ "	0,003	< 0,002
Zn ²⁺ (µg.l ⁻¹)	0,005	< 0,005
Co ²⁺ "	< 0,002	< 0,002
<u>Anions</u> (mg.l ⁻¹)		
HCO ₃ ⁻ "	164,7	350,00
Cl ⁻ "	46,00	17,00
SO ₄ ²⁻ "	93,00	19,00
NO ₂ ⁻ "	0,05	< 0,05
NO ₃ ⁻ "	6,00	8,00
PO ₄ ³⁻ "	0,80	< 0,10
F ⁻ "	0,50	0,30

TABLEAU 2
Caractéristiques physiques et chimiques du sédiment du
Rhône utilisé dans les expériences

Caractéristiques physiques

Granulométrie (%)	{	Sables grossiers > 200 μm	0
		Sables fins 50-200 μm	30,4
		Limons grossiers 20-50 μm	40,9
		Limons fins 2-20 μm	26,9
		Argiles < 2 μm	1,8
Minéralogie des argiles (%)	{	Smectites	5,0
		Illites	50,0
		Kaolinites	10,0
		Chlorites	35,0

Caractéristiques chimiques

	pH de l'eau	7,10	
	Matière organique (%)	3,15	
Eléments échangeables (Eq.kg ⁻¹ sec)	{	Ca ²⁺	3,09.10 ⁻¹
		Mg ²⁺	2,22.10 ⁻³
		K ⁺	1,52.10 ⁻²
		Na ⁺	1,73.10 ⁻³
Eléments hydrosolubles (g.kg ⁻¹ sec)	{	Ca ²⁺	1,26
		Mg ²⁺	4,29.10 ⁻²
		K ⁺	3,50.10 ⁻²
		Na ⁺	2,70.10 ⁻²
	Calcaire total (%)	29,0	

TABLEAU 3
Concentration en éléments chimiques du sédiment utilisé
dans les expériences*

Eléments	Concentration (g.kg ⁻¹ sec)
Ag	-
As	1,0.10 ⁻²
Au	1,3.10 ⁻⁵
Ba	7,7.10 ⁻¹
Br	6,0.10 ⁻³
Ca	1,1.10 ⁻³
Cd	-
Ce	6,6.10 ⁻²
Co	1,0.10 ⁻²
Cr	3,6.10 ⁻²
Cs	7,0.10 ⁻³
Eu	1,2.10 ⁻³
Fe	2,2.10 ⁺¹
Hf	4,9.10 ⁻³
Hg	-
K	1,5.10 ⁺¹
La	2,9.10 ⁻²
Na	6,5
Nd	4,0.10 ⁻²
Rb	8,0.10 ⁻²
Sb	2,6.10 ⁻³
Sc	7,9.10 ⁻³
Sr	3,5.10 ⁻¹
Ta	-
Tb	8,0.10 ⁻⁴
Th	9,0.10 ⁻³
U	7,0.10 ⁻³
W	4,2.10 ⁻³
Yb	2,7.10 ⁻³
Zn	1,5.10 ⁻¹
Zr	-

* Dosages effectués par activation neutronique dans le Laboratoire de Métrologie de l'Environnement CEA/IPSN/DERS - Le Bois des Rames
 - 91400 ORSAY

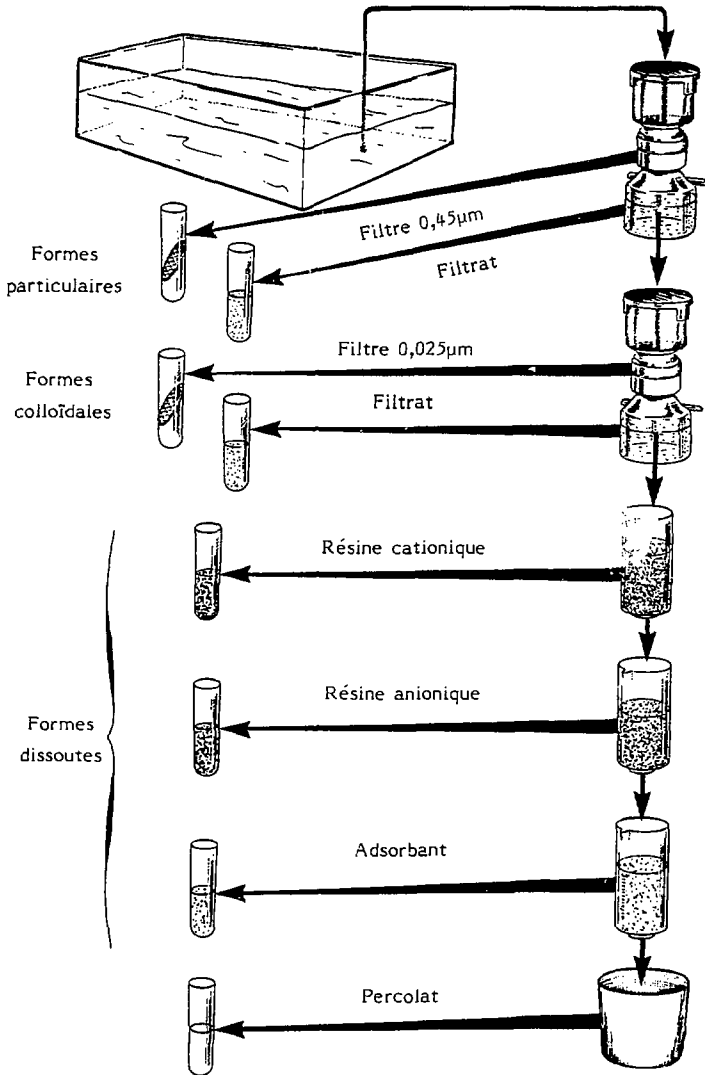


Fig.1 - Représentation schématique des opérations successives effectuées pour la détermination des formes physico-chimiques de l'antimoine 125 et de l'argent 110m.

1.2 Résultats et discussion

1.2.1 L'antimoine 125

1.2.1.1 *Formes physico-chimiques du radioélément lors de la contamination de l'eau*

La solution contaminante est obtenue en diluant les 5 ml de la source mère dans 1 litre d'eau bidistillée. En solution aqueuse, l'espèce Sb^{3+} libre n'existe pas. L'antimoine ne se présente que sous forme d'anions complexes partiellement hydrolysés du type $Sb(OH)_n^{3-n}$ où "n" est fonction du pH (HAHN, 1978). Dans le cas de la dilution mère de $SbCl_3$ il y a en solution des complexes du type $Sb(OH)_n^{3-(n+2)}$, "n" étant fonction du pCl*. La percolation sur résines échangeuses d'ions de 3 ml de solution contaminante, après rinçage avec 3 ml d'eau distillée, a donné les résultats suivants : 2,6 % de formes cationiques, 21,5 % de formes anioniques et 1,3 % de formes neutres. Par ailleurs, 40,2 % ont été retrouvés dans le percolat et 34,4 % dans l'eau de lavage, résultats qui posent le problème de la validité du protocole suivi et en particulier celui de l'utilisation des résines échangeuses d'ions pour la spéciation des formes dissoutes de l'antimoine

1.2.1.2 *Evolution des formes de l'antimoine 125 en l'absence de sédiment*

Quelle que soit la situation expérimentale il n'y a pas de différence fondamentale entre les deux types d'eau (Tableaux 4 à 7) et quelques grandes tendances générales peuvent être dégagées (fig. 3 à 6). La concentration de ^{125}Sb reste à peu près constante ce qui indique une absence d'adsorption du radionucléide sur le diffuseur d'air et les parois des aquariums. En ce qui concerne la physico-chimie de ^{125}Sb on constate qu'il n'y a pas apparition de formes colloïdales et que les formes particulières sont en très faibles proportions, même en présence des carpes. La fraction du radionucléide qui reste dissoute, c'est-à-dire la quasi-totalité, est retrouvée, après percolation, essentiellement dans la résine anionique et le percolat. Les quantités retenues par la résine cationique et l'absorbant non polaire sont très faibles voire négligeables.

* pCl = - log [Cl⁻]

La très forte proportion de ^{125}Sb retrouvée dans le percolat nous a conduit à modifier le protocole expérimental généralement utilisé dans ce type d'études (FERRER, 1983 ; PALLY et al., 1986). Pour le dernier prélèvement avec l'eau du Rhône et à partir de 72 heures pour l'eau de source le rinçage des colonnes a été effectué non plus avec de l'eau distillée mais avec une faible quantité d'eau utilisée pour les expériences. Cette démarche a permis de constater alors une très nette augmentation de la quantité de ^{125}Sb retrouvée dans la résine anionique. Malgré quelques fluctuations ces données permettent cependant de conclure que, dans les conditions expérimentales définies dans le présent travail, environ 90 % de l'Antimoine 125 se retrouvent dans la résine anionique. La plus grande prudence s'impose toutefois quant à l'interprétation des résultats et l'utilisation des résines échangeuses d'ions ne paraît pas être, dans le cas du ^{125}Sb une bonne méthode pour la séparation des formes dissoutes. La très grande labilité de la fixation au niveau de la résine anionique est, à cet égard, très significative.

1.2.1.3 Evolution des formes de l'Antimoine 125 en présence de sédiment

L'évolution de la radioactivité de l'eau brute est remarquablement semblable pour les deux types d'eau. Il se produit une forte diminution de la concentration de l'antimoine 125 dans la phase liquide dont la cinétique correspond à un phénomène exponentiel (Fig. 2). Cette décroissance traduit un transfert du radionucléide dans le sédiment. Ce phénomène est en accord avec le fait que de l'Antimoine 125 a été parfois trouvé dans des échantillons de sédiment prélevés dans le Rhône. A la fin de la première phase de l'expérience (11 jours) la concentration de l'antimoine 125 représente de 19 (eau du Rhône) à 23 % (eau de source) de sa valeur initiale. La fixation de ce radionucléide dans le sédiment est beaucoup moins rapide et importante que celle observée pour l'Argent 110m et d'autres radioéléments tels le ^{137}Cs , le ^{60}Co ou le ^{65}Zn (BAUDIN, 1974, LAMBRECHTS et FOULQUIER, 1986). La remise en suspension complète du sédiment après les prélèvements du 11ème jour ne fait pas apparaître de désorption du ^{125}Sb après la redéposition totale des particules (14ème jour). Au contraire, la décroissance de la radioactivité de l'eau s'accroît ce qui traduit une adsorption accrue du radionucléide dans le sédiment. En ce qui concerne les formes physico-chimiques de l'Antimoine

125 qui reste dans la phase aqueuse (Fig. 7 et 8), il n'y a pas de différence fondamentale entre les deux types d'eau ni avec les cas examinés précédemment (eau seule et eau avec carpes). Il n'y a pas de formes colloïdales et les formes particulières représentent moins de 2 % de la radioactivité de l'eau (Tableaux 8 et 9). Le radionucléide dissous est en quasi totalité retenu dans la résine anionique, si on se réfère aux résultats obtenus après un rinçage limité des résines, effectué avec de l'eau naturelle.

1.2.2 L'Argent 110m

Tous les résultats concernant ce radioélément sont rassemblés dans les tableaux 10 à 15, et illustrés par les figures 9 à 16.

1.2.2.1 Forme physico-chimique du radioélément lors de la contamination de l'eau

La source d'argent-110m utilisée est initialement sous forme de cyanure d'argent AgCN. Ce complexe est maintenu en solution en milieu ammoniacal basique, où il peut réagir pour donner un pool de composés solubles AgCN, AgCN(OH)- et Ag(NH₃)⁺, introduits dans l'eau au temps zéro des expériences. Les équilibres chimiques mis en jeu et les calculs théoriques associés demeurent très complexes et ne permettent pas de prévoir avec précision la répartition de ces différents composés. La percolation de la solution contaminante à travers une série de colonnes échangeuses de cations, d'anions puis adsorbantes, confirme cette hypothèse puisque 48,3 % de l'argent-110m sont retenus par la résine cationique, 51,6 % par la résine anionique et 0,1 % par la résine adsorbante.

Cependant, l'utilisation des résines pour la spéciation des formes dissoutes d'un radioélément demande une grande prudence lors de l'interprétation des résultats car cette technique est destructive. Elle implique la modification et le déplacement des équilibres chimiques en raison des échanges d'ions avec la résine, et ceci d'une façon d'autant plus importante que les cinétiques des réactions concernées sont rapides (BATTAGLIA *et al.*, 1984).

1.2.2.2 Evolution de la radioactivité de l'eau brute

L'évolution de la radioactivité de l'eau brute, pour l'eau du Rhône et l'eau de source, suit une décroissance quasi-exponentielle caractérisée par une cinétique très accélérée en présence de sédiment (Fig. 9 et 10). Dans ce cas, la courbe tend vers une activité nulle à l'équilibre (14 jours). Cette décroissance s'explique par des phénomènes d'adsorption du radioélément sur toutes les surfaces disponibles (parois des aquariums, diffuseurs d'air, carpes, sédiments, matières en suspension...). Sa cinétique est proportionnelle au nombre de sites d'échange présents (très nombreux dans le cas de la présence d'un lit de sédiment). En l'absence de sédiment, une légère différence est constatée entre les deux eaux. Au bout de 8 à 10 jours, l'activité maintenue dans l'eau du Rhône est supérieure à celle maintenue dans l'eau de source, ceci d'une manière plus accentuée dans le cas d'une simple aération.

1.2.2.3 Evolution des formes dissoutes

L'adsorption concerne majoritairement les formes dissoutes du radioélément (phénomène d'échange d'ions). Ainsi, la décroissance de la fraction dissoute explique la diminution de l'activité de l'eau brute. En effet, les formes dissoutes du radioélément deviennent nettement minoritaires au bout de 1 à 2 jours en présence de carpes et de sédiment pour les deux eaux, et au bout de 8 jours dans l'eau de source seule (elles ne représentent alors que 10 à 20 % de l'activité de l'eau brute). Pour l'eau du Rhône aérée seule, une fraction plus importante de l'activité de l'eau brute est maintenue en phase soluble à l'équilibre (50 %). Ceci peut s'expliquer par la présence d'une formation significative de complexes solubles.

Au niveau de la distribution sur les différentes résines, l'argent-110m est plus retenu sur la résine cationique. L'inversion constatée au bout de plusieurs jours (pourcentage de rétention plus élevé pour la résine anionique que pour la résine cationique) est due à une diminution plus rapide dans le milieu des formes retenues par la résine cationique (l'adsorption par échange d'ions, phénomène sans doute dominant, concerne ici les cations).

1.2.2.4 Evolution des formes colloïdales et des formes particulières

L'apparition des formes colloïdales et particulières s'effectue avec une cinétique rapide (niveau d'activité stabilisé au bout de 1 à 2 jours). Ces formes constituent au bout de 8 à 10 jours, 30 à 75 % de l'activité de l'eau brute. Leur taux d'apparition semble lié à la concentration en matières en suspension pour les formes particulières, et en matières organiques pour les formes colloïdales. Pour les eaux simplement aérées, leur taux est beaucoup plus élevé dans l'eau du Rhône que dans l'eau de source peu chargée. Les taux les plus importants sont obtenus en présence de carpes (modification de la composition physico-chimique de l'eau sous l'influence du métabolisme des poissons avec, notamment, augmentation nette de la teneur en matières organiques et matières en suspension).

1.2.2.5 Transfert au sédiment

En présence de sédiment, la décroissance de la radioactivité de l'eau brute est accélérée par rapport à celle observée pour les deux autres cas. La cinétique de transfert de l'argent-110m au sédiment est d'autant plus lente que la concentration en matières en suspension et en matières organiques dans l'eau surnageante est élevée. En effet, un niveau important de radioactivité peut être maintenu dans l'eau brute par apparition de formes particulières et colloïdales. Les échanges sont donc ralentis en présence d'eau du Rhône par rapport aux expériences effectuées avec l'eau de source. D'ailleurs, les facteurs de transfert* calculés pour 11 jours de contact sont respectivement 19 pour l'eau du Rhône et 70 pour l'eau de source.

Dans chacun des cas, au bout de 2 jours, l'activité de l'eau brute est uniquement due aux formes particulières de l'argent-110m, l'apparition de formes colloïdales étant négligeable. La décroissance de cette activité s'explique par une décantation lente vers la surface du lit de sédiment.

* $\frac{[^{110}\text{Ag}] \text{ dans le sédiment}}{[^{110\text{m}}\text{Ag}] \text{ dans l'eau}}$.

Ces résultats expérimentaux confirment les observations faites sur le terrain. En effet, *in situ*, la détection de l'Ag-110m n'a pu être effectuée qu'à partir du sédiment ou des matières en suspension.

La remise en suspension totale du sédiment, effectuée au bout de 11 jours de contact par agitation mécanique, n'implique aucun relargage du radioélément. La décantation en masse a pour effet d'entraîner toutes les particules (accélération du phénomène de décantation des matières en suspension), aboutissant au maintien d'une activité pratiquement nulle de l'eau brute surnageante.

Si une simple agitation mécanique est insuffisante pour que le sédiment puisse jouer le rôle de terme source secondaire, la variation de paramètres physico-chimiques essentiels, tels que le pH ou le potentiel d'oxydoréduction pourrait par contre, influencer le relargage de l'argent-110m piégé dans le sédiment.

1.2.2.6 Discussion

L'évolution des formes de l'argent-110m en milieu aquatique expérimental s'explique principalement par des phénomènes d'adsorption des formes dissoutes présentes au temps initial de la contamination. La diminution de ces formes dissoutes dans le milieu présente une cinétique d'autant plus rapide que le nombre de sites d'échange disponibles est grand.

Le maintien d'un niveau stable de l'activité de l'eau brute s'explique donc par :

- l'adsorption des formes dissoutes sur les matières en suspension entraînant l'apparition rapide de formes particulières,
- la formation de complexes colloïdaux notamment par réaction avec les matières organiques, impliquant l'apparition d'une fraction granulométrique supplémentaire ($0,45 \mu\text{m} < \text{diamètre} < 0,025 \mu\text{m}$),

- la formation de complexes solubles si la concentration en ligands minéraux dans l'eau est suffisante (cas de l'eau du Rhône pour les chlorures). Pour les deux eaux, les concentrations en sulfates, phosphates, carbonates, hydroxydes, ..., sont trop faibles pour permettre l'apparition quantitativement significative de complexes avec l'argent-110m.

TABLEAU 4
Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques
de l'Antimoine 125 dans l'eau du Rhône seule

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)	Percolat (%)
0,04	186,1	0,7	6,9	55,2	4,6	32,6
0,08	166,6	0,9	0,5	54,6	0,3	43,6
0,17	158,1	1,2	0,1	74,1	0,5	24,2
0,25	160,5	1,0	0,1	62,7	0,3	36,0
1	160,0	0,9	0,1	65,3	0,3	31,5
2	163,0	1,1	0,1	66,8	0,4	31,6
3	168,0	1,0	0,1	61,1	0,4	37,4
4,21	172,4	0,7	0,1	69,0	0,5	29,6
7	162,7	0,7	0,0	64,7	0,2	34,4
9	168,3	0,9	0,1	61,2	0,6	37,1
11*	158,0	1,3	0,3	96,0	0,8	1,5

* Protocole modifié : rinçage des colonnes avec de l'eau du Rhône et non plus de l'eau distillée.

TABLEAU 5
Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques
de l'Antimoine 125 dans l'eau du Rhône avec des carpes

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)	Percolat (%)
0,04	157,5	1,0	0,1	57,2	0,6	41,5
0,08	163,4	1,0	0,1	46,7	0,4	51,7
0,17	157,7	0,7	0,1	70,9	0,3	28,0
0,25	152,7	1,0	0,1	69,4	0,2	29,3
1	159,0	1,0	0,1	72,9	0,3	25,7
2	164,4	0,9	0,1	67,1	0,4	31,5
3	164,1	1,1	0,1	49,5	0,4	48,9
4,21	165,9	0,7	0,0	67,9	0,2	31,2
7	159,1	1,1	0,0	66,0	0,1	32,7
9	156,2	0,8	0,1	58,6	0,7	39,8
11*	153,6	1,2	0,4	93,1	1,6	3,7

* Protocole modifié : rinçage des colonnes avec de l'eau du Rhône et non plus de l'eau distillée.

TABLEAU 6

Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques de l'Antimoine 125 dans l'eau de source seule

Temps (jours)	Concentration		Formes physico-chimiques			
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	C+	A-	N	Percolat
		(%)	(%)	(%)	(%)	(%)
0,04	171,0	1,4	0,0	27,1	0,7	70,8
0,08	167,9	0,7	0,0	42,1	0,1	56,2
0,17	163,3	1,0	0,1	45,5	1,1	52,2
0,25	163,4	1,0	0,0	43,4	0,8	54,7
1	169,5	0,9	0,0	47,9	0,6	50,5
2	162,9	0,6	0,1	52,1	0,9	46,3
3*	159,4	1,0	0,1	95,8	0,1	2,8
4	153,4	1,1	0,1	86,8	2,7	9,3
7	152,1	0,9	0,1	76,7	4,3	18,0
8	148,8	0,9	0,1	80,7	3,8	14,4
11	172,8	0,7	0,2	95,6	1,1	2,4

* Protocole modifié : rinçage des colonnes avec de l'eau du Rhône et non plus de l'eau distillée.

TABLEAU 7

Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques de l'Antimoine 125 dans l'eau de source avec des carpes

Temps (jours)	Concentration		Formes physico-chimiques			
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	C+	A-	N	Percolat
		(%)	(%)	(%)	(%)	(%)
0,04	165,9	0,8	0,0	56,7	0,9	41,6
0,08	165,2	1,0	0,0	48,5	0,7	49,7
0,17	164,1	1,0	0,0	55,3	0,8	42,9
0,25	161,9	1,0	0,0	52,3	0,8	45,9
1	165,3	1,0	0,0	59,0	0,6	39,3
2	162,0	1,0	0,1	58,3	0,8	39,8
3*	156,8	0,7	0,1	93,1	1,8	4,3
4	148,9	0,9	0,1	69,5	3,7	25,7
7	147,6	1,1	0,1	93,2	3,5	2,0
8	144,3	1,1	0,2	90,8	3,5	4,4
11	152,7	1,2	0,2	93,4	2,1	3,1

* Protocole modifié : rinçage des colonnes avec de l'eau du Rhône et non plus de l'eau distillée.

TABLEAU 8
Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques
de l'Antimoine 125 dans l'eau du Rhône sur un lit de sédiment

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)	Percolat (%)
0,04	170,1	1,4	0,1	36,4	0,9	61,1
0,08	164,2	1,5	0,1	31,5	0,4	66,4
0,17	156,5	1,4	0,1	41,6	0,7	56,2
0,25	147,2	1,5	0,1	43,0	0,6	54,8
1	136,7	1,5	0,1	45,0	0,5	52,9
2	114,0	1,5	0,1	36,7	0,3	61,3
3	95,2	1,5	0,2	28,0	0,5	69,7
4,21	78,7	1,3	0,0	42,7	0,5	55,5
7	47,2	0,6	0,0	36,7	0,0	62,7
9	40,8	1,3	0,1	34,8	1,0	62,8
11*	32,1	1,2	0,4	71,7	2,2	24,6
14	12,9	2,9	0,4	60,5	3,0	33,3
15	10,8	3,0	0,5	63,0	2,3	31,5
17	9,2	1,6	0,5	62,7	2,7	32,3
21	7,4	1,3	0,5	51,8	2,2	44,5

* Protocole modifié : rinçage des colonnes avec de l'eau du Rhône et non plus de l'eau distillée. Sédiment mis en suspension après le prélèvement.

TABLEAU 9

Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques de l'Antimoine 125 dans l'eau de source sur un lit de sédiment

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)	Percolat (%)
0,04	171,2	0,9	0,0	48,9	0,9	49,4
0,08	171,0	0,9	0,0	50,7	0,6	47,8
0,17	162,7	1,1	0,1	46,0	0,8	52,0
0,25	151,6	0,8	0,0	45,8	0,9	52,5
1	139,4	1,2	0,0	51,8	0,9	46,1
2	115,1	1,3	0,1	51,3	1,1	45,3
3	98,8	1,4	0,1	92,2	2,0	4,2
4	98,7	1,1	0,1	47,3	2,3	48,6
7	55,1	1,4	0,2	75,5	3,2	19,0
8	49,0	1,7	0,2	84,2	3,4	10,4
11*	39,0	1,6	0,3	94,2	2,0	1,9
14	21,8	1,7	0,4	90,3	3,5	4,2
21	9,5	1,6	0,4	74,3	4,2	19,9

* Protocole modifié : rinçage des colonnes avec de l'eau du Rhône et non plus de l'eau distillée. Sédiment mis en suspension après le prélèvement.

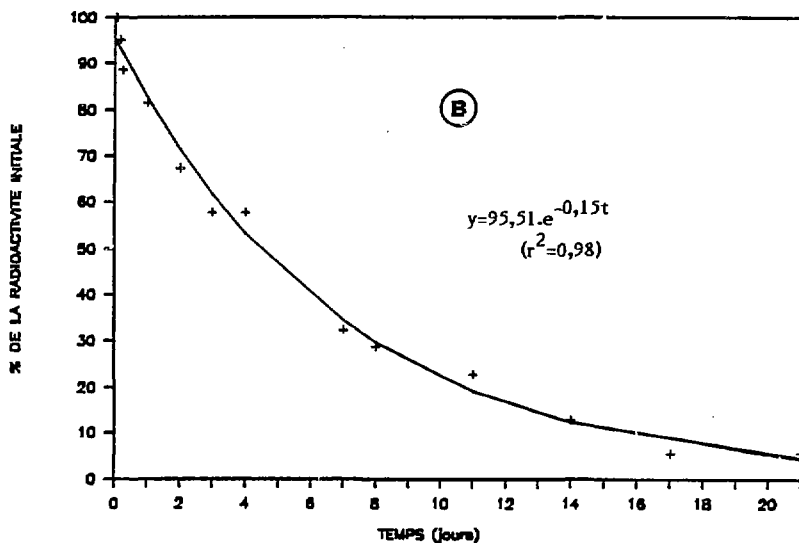
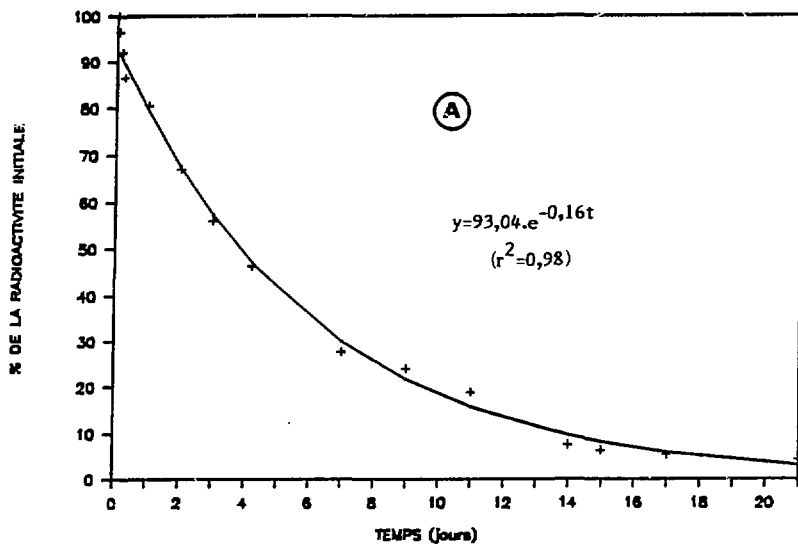


Fig.2 - Evolution de la concentration en ^{125}Sb de l'eau sur lit de sédiment exprimée en pourcentage de sa valeur initiale (A: eau du Rhône; B: eau de source).

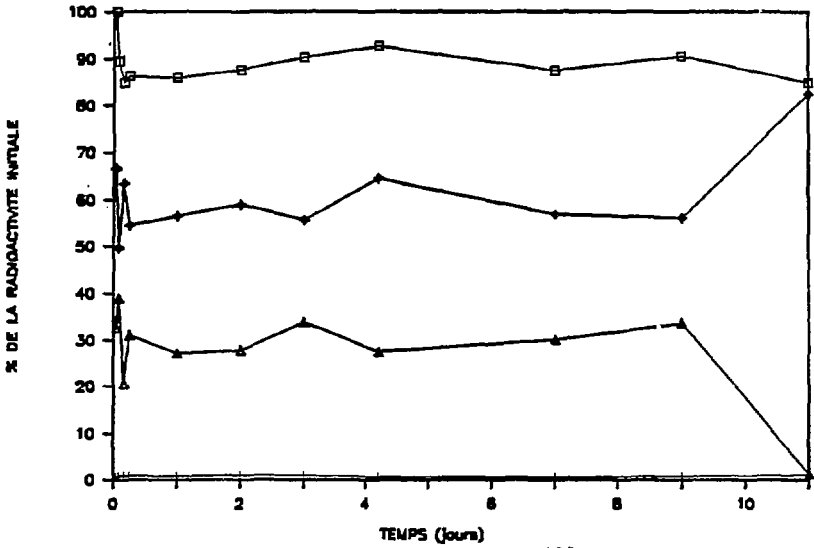


Fig.3 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{125}Sb exprimée en % de la concentration initiale - Eau du Rhône seule - (□ eau brute; + formes particulaires; ♦ formes colloïdales et dissoutes; Δ percolat).

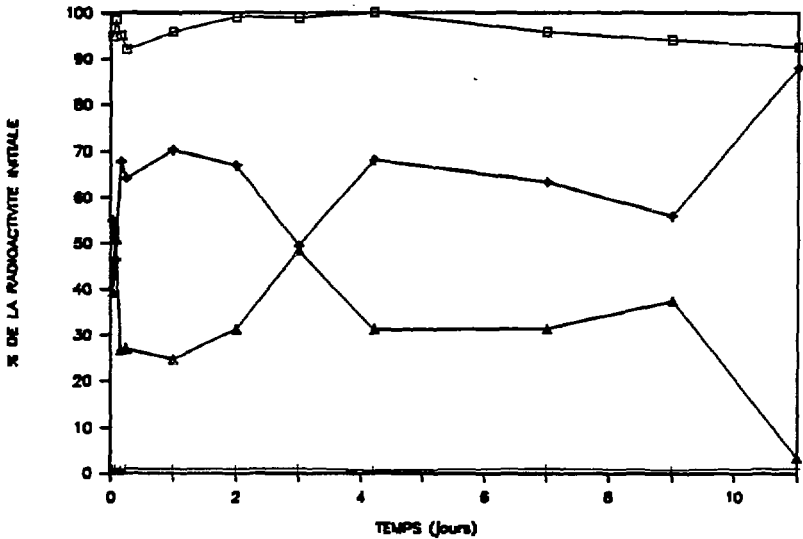


Fig.4 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{125}Sb exprimée en % de la concentration initiale - Eau du Rhône avec carpes - (□ eau brute; + formes particulaires; ♦ formes colloïdales et dissoutes; Δ percolat).

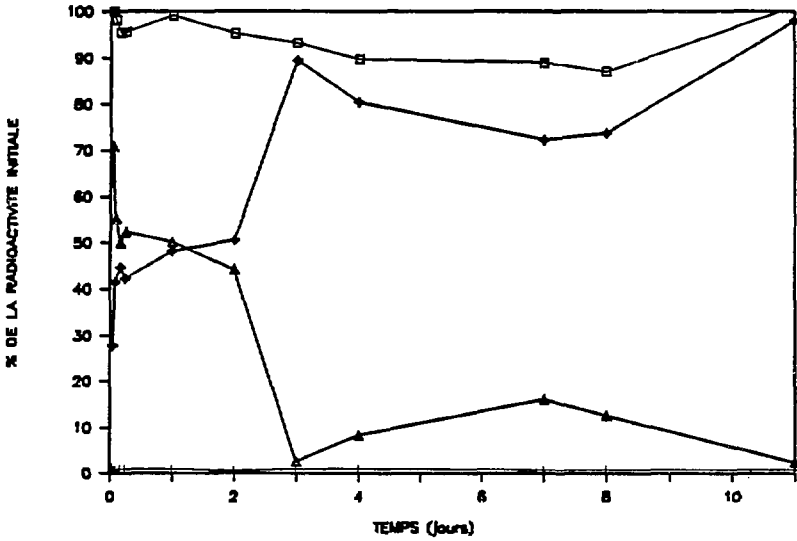


Fig.5 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{125}Sb exprimée en % de la concentration initiale - Eau de source seule - (□ eau brute; + formes particulaires; ◆ formes colloïdales et dissoutes; Δ percolat).

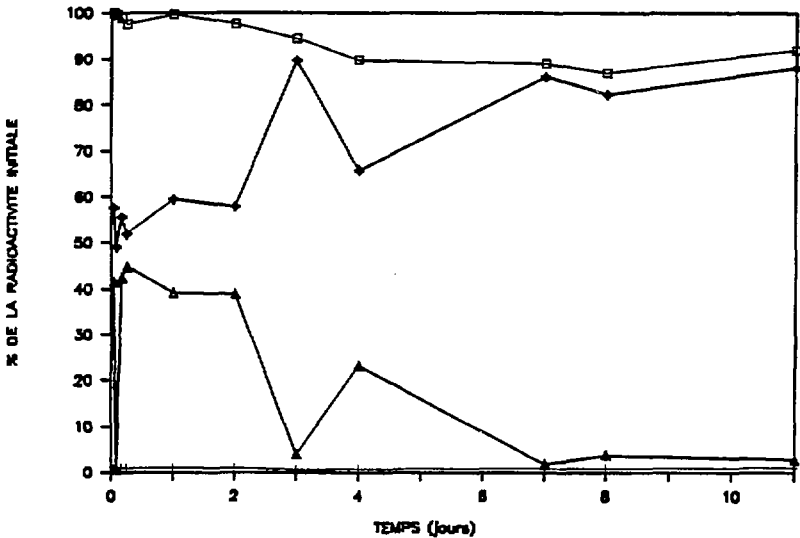


Fig.6 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{125}Sb exprimée en % de la concentration initiale - Eau de source avec carpes - (□ eau brute; + formes particulaires; ◆ formes colloïdales et dissoutes; Δ percolat).

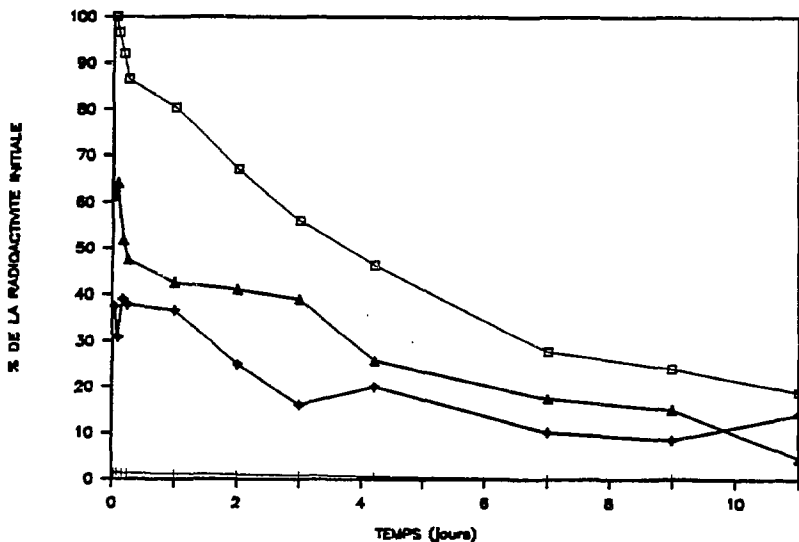


Fig.7 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{125}Sb exprimée en % de la concentration initiale - Eau du Rhône sur lit de sédiment - (\square eau brute; + formes particulières; \blacklozenge formes colloïdales et dissoutes; \triangle percolat).

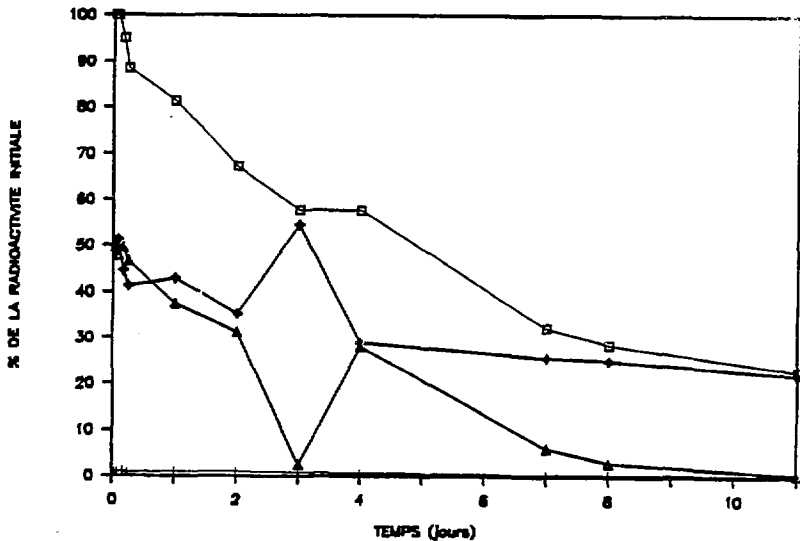


Fig.8 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{125}Sb exprimée en % de la concentration initiale - Eau de source sur lit de sédiment - (\square eau brute; + formes particulières; \blacklozenge formes colloïdales et dissoutes; \triangle percolat).

TABLEAU 10

Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques de l'Argent 110 m dans l'eau du Rhône seule

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	Fc (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)
0,08	194,6	2,6	1,8	84,4	10,8	0,4
0,17	211,9	3,9	2,5	87,2	6,1	0,3
0,25	200,0	5,2	3,9	81,9	8,5	0,5
1	195,1	11,0	5,6	72,8	10,0	0,6
2	174,4	13,9	10,8	56,7	17,8	0,8
3	162,3	18,3	14,4	40,9	24,6	1,8
4	140,4	22,8	15,7	32,0	28,2	1,3
7	111,9	35,5	18,6	6,0	38,3	1,6
9	101,4	35,2	14,2			
11	94,2	33,3	12,3	2,8	49,9	1,7

TABLEAU 11

Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques de l'Argent 110 m dans l'eau du Rhône avec des carpes

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	Fc (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)
0,08	182,5	29,9	10,5	51,8	7,3	0,5
0,17	161,4	44,5	14,7	27,6	12,5	0,7
0,25	158,1	52,9	19,1	13,5	13,0	1,5
1	139,9	56,0	28,4	4,0	10,8	0,8
2	127,2	50,1	31,3	3,8	13,7	1,1
3	127,3	56,4	30,3	2,3	8,3	2,7
4	116,4	50,5	29,9	2,8	14,6	2,2
7	103,4	61,2	23,2	0,9	13,0	1,7
9	91,9	62,5	24,3	1,6	10,4	1,2
11	89,5	67,3	22,6	0,9	8,0	1,2

TABLEAU 12

Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques de l'Argent 110m dans l'eau du Rhône sur un lit de sédiment.

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.m ⁻¹)	Fp (%)	Fc (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)
0,08	158,5	10,7	4,1	76,1	8,7	0,4
0,17	173,0	15,3	2,2	77,3	4,9	0,3
0,25	154,2	18,4	1,9	70,9	8,4	0,4
1	102,5	39,8	3,6	49,6	6,5	0,5
2	57,3	67,4	6,6	20,0	5,3	0,7
3	46,0	85,0	8,9	2,0	2,8	1,3
4	38,5	87,3	6,8	1,0	4,2	0,7
7	27,8	84,5	9,0	1,4	4,3	0,8
9	21,4	79,0	13,1	1,3	5,6	1,1
11*	18,4	77,2	12,0	3,4	5,8	1,6
14	4,0	72,5	10,0	7,5	7,5	2,5
16	3,5	68,6	11,4	8,6	9,6	2,8
18	2,9	62,1	10,3	11,0	13,2	3,4
21	3,3	48,5	12,1	9,1	15,2	15,1
23	2,3	47,8	13,0	17,4	17,4	4,4

* Sédiment mis en totalité en suspension après les prélèvements.

TABLEAU 13
Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques
de l'Argent 110m dans l'eau de source seule

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	Fc (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)
0,08	193,7	2,6	4,4	80,1	12,6	0,3
0,17	187,9	3,6	2,2	81,0	13,0	0,2
0,25	185,0	4,5	2,6	80,4	12,3	0,2
1	175,2	8,9	3,8	78,9	8,2	0,2
2	145,0	13,2	5,3	74,6	6,7	0,2
3	125,7	13,8	6,2	74,2	5,5	0,3
4	97,5	18,4	6,6	68,6	5,8	0,6
7	56,7	40,2	13,4	40,6	4,9	9,0
9	39,4	61,9	15,7	16,0	5,3	1,1
11	15,3	75,2	11,1	6,5	5,9	1,3

TABLEAU 14
Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques
de l'Argent 110m dans l'eau de source avec des carpes

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	Fc (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)
0,08	181,6	18,8	7,0	47,6	26,1	0,5
0,17	172,7	25,7	10,2	44,6	19,3	0,2
0,25	168,3	31,3	8,4	37,5	22,4	0,4
1	143,9	58,9	17,4	2,6	20,5	0,6
2	138,6	72,9	17,1	0,7	8,5	0,8
3	142,0	76,0	15,5	0,5	7,0	1,0
4	115,3	73,5	17,0	0,5	7,9	1,1
7	109,5	71,8	18,9	0,4	7,1	1,8
9	82,8	65,6	24,5	0,6	7,7	1,6
11	80,2	70,7	18,3	0,6	8,5	1,9

TABLEAU 15
Evolution de la concentration et des formes physico-chimiques
de l'Argent 110 m dans l'eau de source sur lit de sédiment

Temps (jours)	Concentration	Formes physico-chimiques				
	eau brute (Bq.ml ⁻¹)	Fp (%)	Fc (%)	C+ (%)	A- (%)	N (%)
0,08	127,7	42,8	2,0	44,3	10,6	0,3
0,17	91,5	48,6	4,2	38,7	8,3	0,2
0,25	68,9	46,2	2,5	39,3	11,7	0,3
1	29,2	53,4	5,1	37,0	4,1	0,4
2	22,6	69,9	5,3	21,2	3,1	0,5
3	16,1	81,4	6,2	9,3	2,5	0,6
4	15,5	85,8	7,1	2,6	3,2	1,3
7	12,7	91,5	4,7	0,8	2,4	0,6
9	8,6	87,6	7,0	2,3	2,4	0,7
11*	6,4	81,3	9,4	3,1	4,7	1,6
14	4,0	70,0	12,5	7,5	5,0	5,0
16	2,3	75,2	8,8	4,4	8,9	2,7
21	2,4	50,6	12,7	21,1	12,6	3,0
22	1,97	50,8	15,2	20,3	10,1	3,6

* Sédiment mis en totalité en suspension dans l'eau après les prélèvements.

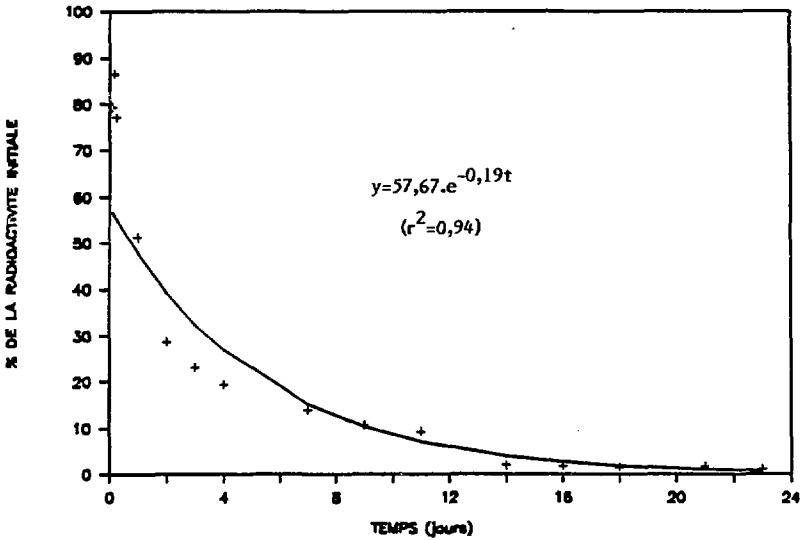


Fig.9 - Evolution de la concentration en ^{110m}Ag de l'eau du Rhône sur lit de sédiment exprimée en pourcentage de sa valeur initiale.

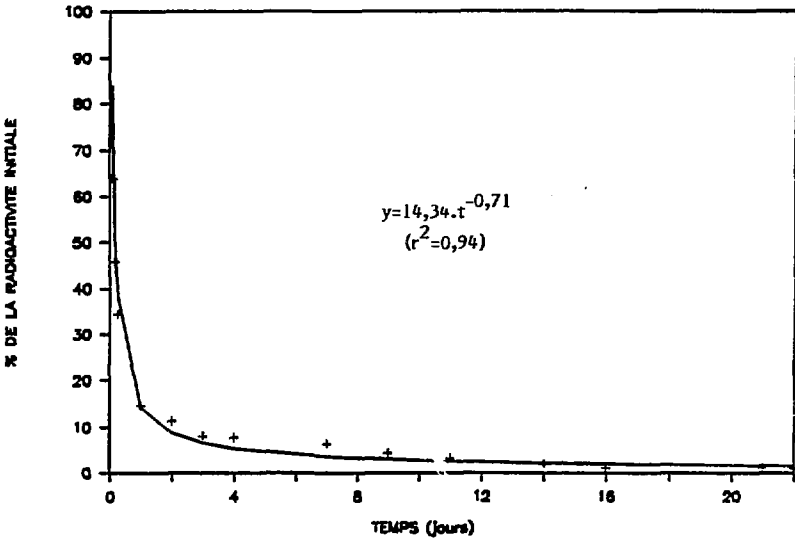


Fig.10 - Evolution de la concentration en ^{110m}Ag de l'eau de source sur lit de sédiment exprimée en pourcentage de sa valeur initiale.

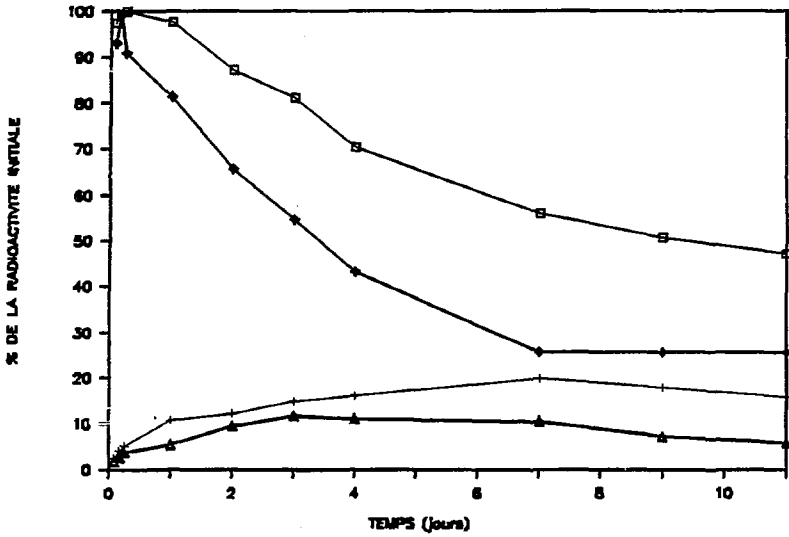


Fig.11 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{110m}Ag exprimée en % de la concentration initiale - Eau du Rhône seule - (□ eau brute; + formes particulaires; Δ formes colloïdales ♦ formes dissoutes).

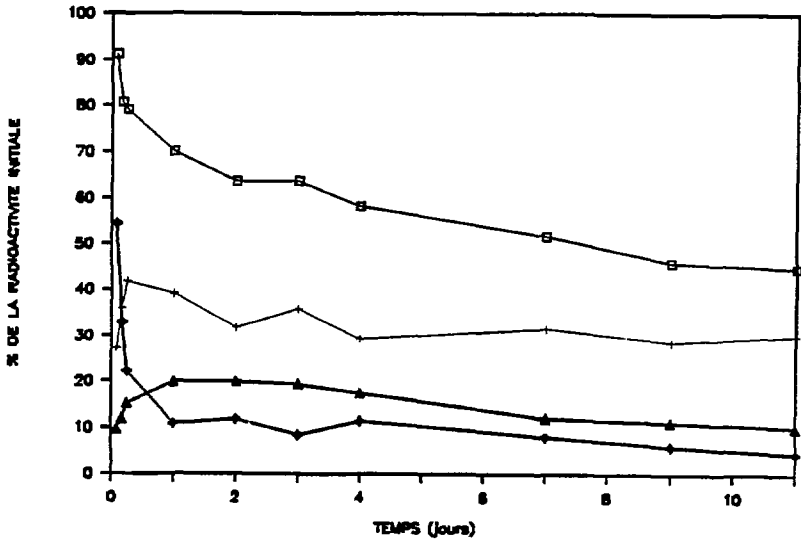


Fig.12 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{110m}Ag exprimée en % de la concentration initiale - Eau du Rhône avec carpes - (□ eau brute; + formes particulaires; Δ formes colloïdales; ♦ formes dissoutes).

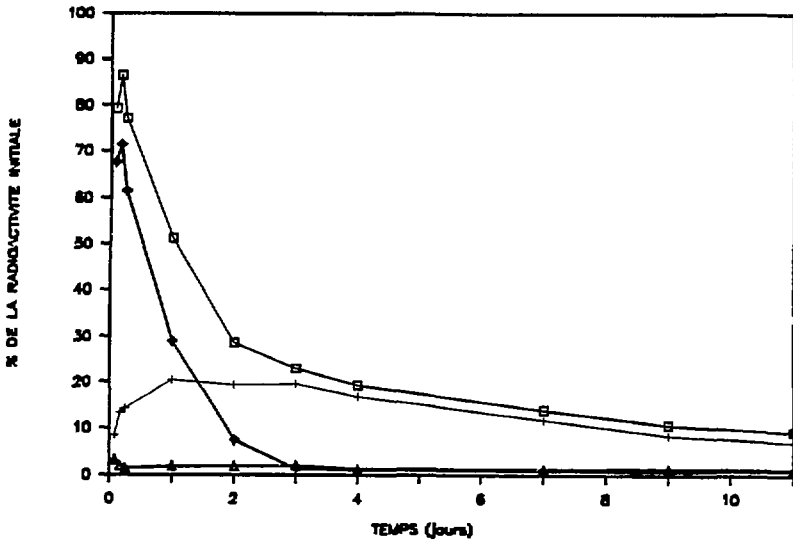


Fig.13 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{110m}Ag exprimée en % de la concentration initiale - Eau du Rhône sur lit de sédiment - (□ eau brute; + formes particulaires; Δ formes colloïdales; ♦ formes dissoutes).

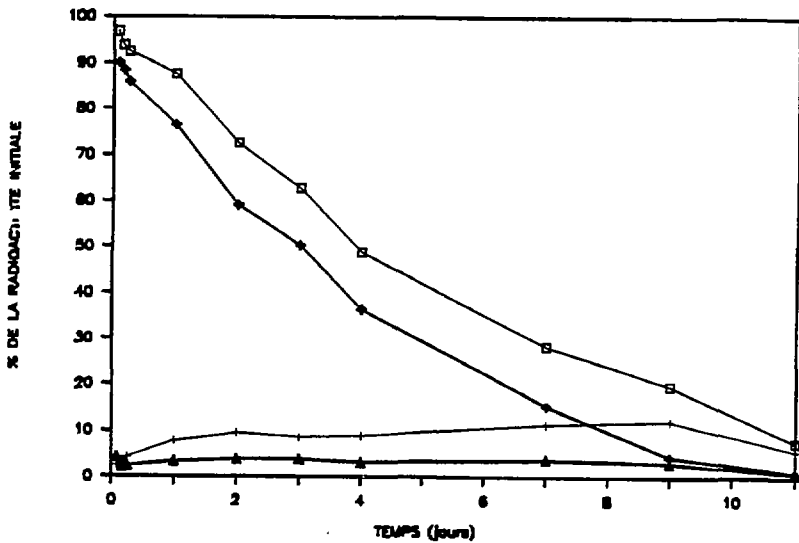


Fig.14 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{110m}Ag exprimée en % de la concentration initiale - Eau de source seule - (□ eau brute; + formes particulaires; Δ formes colloïdales; ♦ formes dissoutes).

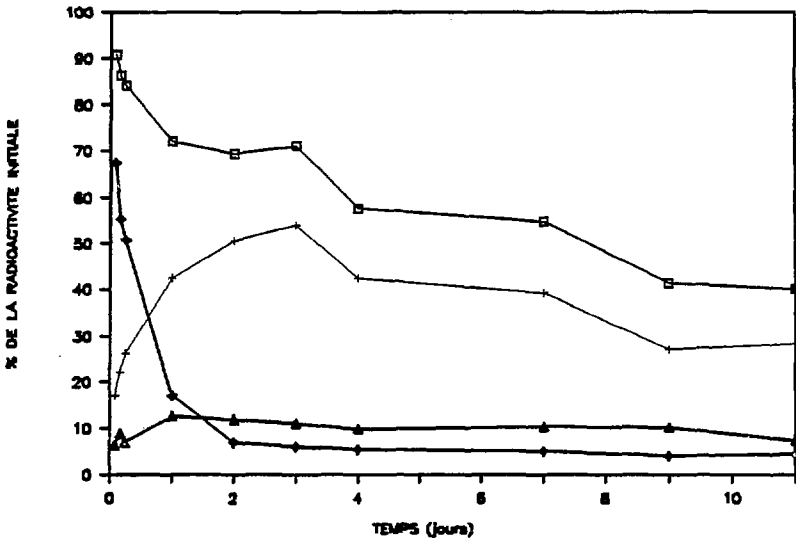


Fig.15 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{110m}Ag exprimée en % de la concentration initiale - Eau de source avec carpes - (□ eau brute; + formes particulières; ◆ formes colloïdales; Δ formes dissoutes).

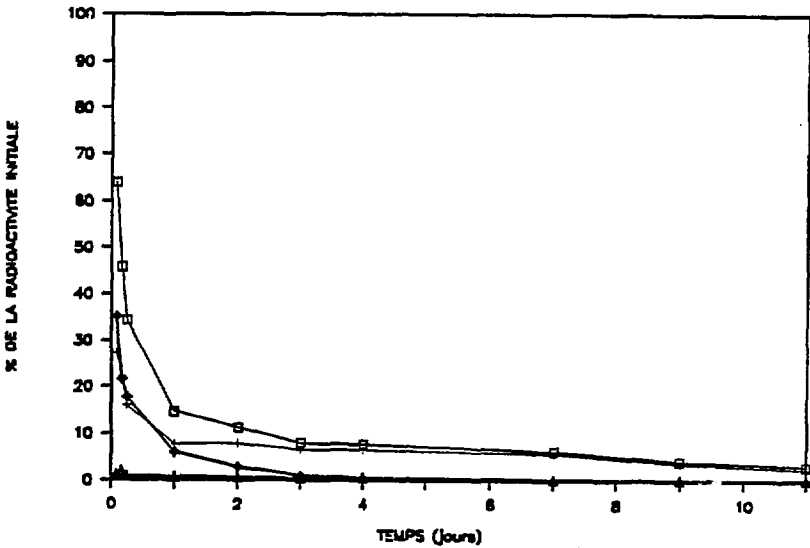


Fig.16 - Evolution des formes physico-chimiques du ^{110m}Ag exprimée en % de la concentration initiale - Eau de source sur lit de sédiment - (□ eau brute; + formes particulières; ◆ formes colloïdales; Δ formes dissoutes).

2. BIOACCUMULATION PAR LA VOIE DIRECTE ET ELIMINATION DE L'ANTIMOINE 125 ET DE L'ARGENT 110m PAR LA CARPE

2.1 L'antimoine 125

2.1.1 Matériel et méthodes

On utilise un aquarium en plastique d'une capacité de 5 litres dans lequel sont introduits 3 litres d'eau de source filtrée en permanence. Cette eau, dont l'oxygénation est assurée par un diffuseur d'air est maintenue à une température de $20 \pm 2^\circ\text{C}$. L'eau est contaminée par l'ajout d'une solution d'antimoine 125 (SbCl_3). La radioactivité totale est de $3,69 \cdot 10^6$ Bq ce qui correspond à une concentration initiale de $1087 \text{ Bq} \cdot \text{ml}^{-1}$, 20 carpes juvéniles dont la masse moyenne est de $2 \pm 0,1$ g sont placées dans l'aquarium une heure après la contamination de l'eau. Elles sont nourries régulièrement avec des larves de chironomes vivantes. Les carpes sont périodiquement prélevées, anesthésiées au MS 222 et pesées. Leur radioactivité est mesurée par spectrométrie gamma NaI sur un cristal plan, le sélecteur étant réglé sur les pics 600,56 à 635,83 Kev. A la fin de l'étude de la contamination 10 individus sont disséqués afin d'évaluer la contamination des organes. Les 10 poissons restants sont placés dans un aquarium contenant de l'eau inactive pour suivre leur décontamination. Comme pendant la contamination, les individus sont nourris avec des larves de chironomes et périodiquement leur radioactivité est mesurée. A la fin de la phase d'élimination, la répartition tissulaire du radionucléide résiduel est étudiée. Il faut préciser qu'à la suite d'incidents, nous avons dû recommencer l'expérience relative à l'élimination du radionucléide avec un autre lot de poissons. 10 carpes ont été contaminées pendant une semaine, durée suffisante pour atteindre 90 % de la valeur maximale, puis introduites dans un aquarium en eau inactive. De ce fait, la quantité totale de ^{125}Sb fixé par les poissons en fin de phase de contamination (Tableau 17) n'est pas la même que celle qui correspond au début de la phase d'élimination (Tableau 19).

2.1.2 Résultats et discussion

2.1.2.1 Phase d'accumulation du ^{125}Sb

2.1.2.1.1 Cinétique de l'accumulation du ^{125}Sb

Conformément aux résultats obtenus lors de l'étude des formes physico-chimiques de l'antimoine 125 (parag. 1.2.1.2), la radioactivité de l'eau de l'aquarium demeure stable au cours des 20 jours de l'expérience (Tableau 16). Après 14 jours, l'eau commençant à se troubler, la laine de verre du filtre a été changée, ce qui a entraîné une très légère baisse de la concentration de l'antimoine 125 dans l'eau.

La radioactivité des carpes atteint rapidement son niveau maximal qui est peu élevé ainsi que l'indique notamment la faible valeur du facteur de concentration (Tableau 17). Les valeurs successives de ce paramètre peuvent être ajustées à un modèle exponentiel (fig. 17) fondé sur l'existence, dans les organismes, de plusieurs compartiments caractérisés par des vitesses différentes des flux entrant et sortant d'un élément considéré (COMAR, 1955 ; GOLDSTEIN ET ELWOOD, 1971 ; AOYAMA ET INOUE 1973). Une extrapolation à partir de ce modèle permet d'autre part de calculer les valeurs maximales des niveaux de contamination et le temps nécessaire à l'établissement de l'état d'équilibre. La cinétique de l'évolution du facteur de concentration peut être représentée par l'équation :

$$FC = 0,137 (1 - e^{-0,381t}) + 0,013 (1 - e^{-0,026t})$$

D'après cette équation, la valeur maximale de ce facteur est de 0,15 (0,137 ± 0,013), après 83 jours, durée calculée avec l'équation :

$$t = \frac{1}{0,026} \times \frac{(-\text{Log } (0,137 + 0,013))}{100 \times 0,013}$$

A titre de comparaison, on peut citer les travaux de KIMURA (1984) qui a déterminé un facteur de concentration de 0,16 pour des carpes contaminées pendant 41 jours. Pour différentes espèces de poissons marins AMIARD (1973) cite des valeurs variant de 0,15 à 0,40.

2.1.2.1.2 Concentration et distribution du ^{125}Sb dans les organes de la carpe

La concentration de l'antimoine 125 dans les différents organes et tissus du poisson ne présente pas des variations de grande amplitude (Tableau et Fig. 18). Les valeurs minimale et maximale concernent respectivement les muscles (92 Bq.g^{-1}) et le tube digestif (313 Bq.g^{-1}). Les viscères ont une concentration relativement faible par rapport à celle des autres organes ou tissus, contrairement à ce que l'on observe par exemple pour le ^{65}Zn (BAUDIN, 1981), le ^{22}Na (BAUDIN et al. 1981), le ^{60}Co (FRITSCH, 1986) ou le $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (parag. 2.2.2.1.2). La répartition du radionucléide, exprimée en % de la radioactivité totale (Fig. 19) traduit également ce phénomène. On peut s'étonner de la part importante de la tête dans cette répartition : l'encéphale, et le tissu nerveux plus généralement, fixerait-il l'antimoine ? La bibliographie ne fournit aucune indication à ce sujet. Il faut souligner d'autre part que la partie comestible des poissons présente la concentration la plus faible et renferme moins de 10 % de la quantité totale de radionucléide fixé.

2.1.2.2 Phase d'élimination du ^{125}Sb

2.1.2.2.1 Cinétique de l'élimination du ^{125}Sb

La radioactivité des carpes diminue au cours des 28 jours de l'expérience pour atteindre 30 % de sa valeur initiale (Tableau 19). La concentration de l'antimoine 125 diminue un peu plus rapidement du fait de la légère croissance pondérale des carpes. La cinétique de l'évolution de la concentration du radionucléide (Fig. 20) correspond à une somme de deux exponentielles dont l'équation est :

$$C = 54,68.e^{-0,381t} + 45,32.e^{-0,026t}$$

Cette équation met en évidence l'existence de deux compartiments qui représentent respectivement 53,7 % et 45,3 % du radionucléide total fixé par le poisson. Les deux périodes biologiques du ^{125}Sb correspondant à la cinétique de décontamination sont les suivantes :

$$Tb_1 = \text{Log } 2/0,381 = 1,8 \text{ jour}$$

$$Tb_2 = \text{Log } 2/0,026 = 27 \text{ jours}$$

Pour la carpe KIMURA (1984) cite une période biologique de 70 jours quand le poisson est contaminé par l'eau et de 43 jours quand il est contaminé par la nourriture. Pour divers invertébrés marins VAN WEERS et LOWRIER (1980) signalent des périodes biologiques de 10 jours pour la crevette (*Crangon crangon*) de 21 jours pour la moule (*Mytilus edulis*) et 72 jours pour le crabe (*Carcinus maenas*).

2.1.2.2 Concentration et distribution du ^{125}Sb dans les organes de la carpe

Après 28 jours de décontamination, la concentration de l'antimoine 125 est quasiment nulle dans la rate et la vessie natatoire, faible dans les autres viscères et les muscles (Tableau 20 et fig. 21 et 22). La distribution du radionucléide résiduel n'est pas fondamentalement différente de celle constatée après la phase d'accumulation. Toutefois, on observe que la proportion du ^{125}Sb liée à la peau a doublé et que l'importance de la tête comme site préférentiel de fixation est confirmée.

2.2 L'argent 110m

2.2.1 Matériel et méthodes

La méthodologie générale décrite pour les expériences menées avec le ^{125}Sb est valable pour celles relatives au ^{110m}Ag . Toutefois, une modification dans le protocole expérimental a dû être apportée en raison des phénomènes d'adsorption qui concernent ce radionucléide (parag. 1.2.2.2) afin que les poissons ne se trouvent pas dans une eau ayant un trop faible niveau de radioactivité. Pour contourner cette difficulté, on utilise une série d'aquariums et non pas un seul comme précédemment. Les carpes sont introduites au jour J dans le premier bac dont l'eau a été contaminée au jour J-1. Après 2 jours elles sont introduites dans un autre aquarium dont l'eau a été contaminée la veille. Le transfert des poissons d'un bac à l'autre est ainsi effectué 2 à 3 fois par semaine pendant toute la durée de l'expérience. Ce mode opératoire permet de simuler une

contamination chronique des poissons dans une eau dont la concentration moyenne est de $15,2 \text{ Bq.ml}^{-1}$. En réalité, dans chaque aquarium la concentration de l'eau diminue de 22 Bq.ml^{-1} à 6 Bq.ml^{-1} . La radioactivité des carpes est mesurée, après anesthésie, par spectrométrie gamma, le sélecteur étant réglé sur les pics 1384 à 1562 KeV.

2.2.2 Résultats et discussion

2.2.2.1 Phase d'accumulation du ^{110m}Ag

2.2.2.1.1 Cinétique de l'accumulation du ^{110m}Ag

La radioactivité des carpes augmente régulièrement pendant les 41 jours de l'expérience et, contrairement à ce que l'on observait pour l'antimoine, le niveau maximal de la bioaccumulation ne semble pas être atteint (Tableau 21). L'évolution du facteur de concentration de l'argent 110m pour les carpes correspond à un modèle de type exponentiel qui, d'après les valeurs successives de ce paramètre, peut se traduire par l'équation suivante :

$$FC = 36,38 (1 - e^{-1,149t}) + 104,74 (1 - e^{-0,029t})$$

D'après cette équation la valeur maximale du facteur de concentration est d'environ 140 et le temps après lequel s'instaurera l'équilibre est de 140 jours (Fig. 23). Cette valeur du facteur de concentration est relativement élevée par rapport à celles trouvées pour la même espèce lors de la contamination par d'autres radionucléides. Ainsi dans des conditions similaires les facteurs de concentration évalués sont de 100 pour le ^{65}Zn et le ^{54}Mn , 11 pour le ^{137}Cs , 6 pour le ^{60}Co et 50 pour le ^{22}Na (BAUDIN et al., 1981 ; BAUDIN, 1983 ; LAMBRECHTS, 1984 ; FRITSCH et BAUDIN, 1984). Pour les poissons marins Ancellin et al. (1979) citent des valeurs comprises entre 0 et 600.

2.2.2.1.2 Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe

Après 41 jours de contamination, un facteur de 26 existe entre les concentrations extrêmes du ^{110m}Ag dans les différents organes et tissus des poissons. Le foie, le tube digestif, le rein et la rate présentent les valeurs les plus élevées (Tableau 22 et Fig. 24). D'autre part, dans ces quatre organes se retrouve près de 78 % du radionucléide total fixé par les carpes (Fig. 25). On constate que les viscères abdominaux qui jouent un rôle important dans les processus d'assimilation et d'excrétion ont des facteurs de concentration très élevés, près de 900 pour le foie et de 560 pour le tube digestif. POUVREAU et AMIARD (1974) ont également trouvé pour un poisson marin, *Blennius pholis* un facteur de concentration du ^{110m}Ag plus important dans les viscères que dans l'animal *in toto* (320 contre 40).

A l'inverse, les organes à métabolisme plus lent tel que les muscles, le squelette, la peau ou la tête ont des facteurs de concentration inférieurs à 40. PENTREATH (1977) trouve un facteur de concentration de 30 dans les muscles du carrelet (poisson marin). POUVREAU et AMIARD (1974) donnent une valeur de 8 pour la blennie. Du point de vue de la protection sanitaire il faut souligner que, chez la carpe, la partie comestible renferme moins de 10 % de radionucléide total fixé et que le facteur de concentration est le plus faible de tous les tissus de l'organisme.

2.2.2.2 Phase d'élimination du ^{110m}Ag

2.2.2.2.1 Cinétique de l'élimination du ^{110m}Ag

Au cours des 42 jours que dure la phase de décontamination, la radioactivité totale des carpes décroît d'un peu plus de 70 % tandis que la concentration du ^{110m}Ag diminue encore plus fortement en raison du grossissement des individus (Tableau 23). L'élimination du radionucléide est un phénomène biphasique qui correspond à la somme de deux exponentielles (Fig. 26). La décroissance de la quantité totale de ^{110m}Ag retenue par les poissons se traduit par l'équation suivante :

$$Y = 23,58 \cdot e^{-0,277t} + 76,42 \cdot e^{-0,023t}$$

Cette équation montre qu'environ les 3/4 du radionucléide fixé appartiennent au deuxième compartiment qui correspond à l'élimination lente. Les deux périodes biologiques du ^{110m}Ag sont de 0,8 (T_{b1}) et 30 jours (T_{b2}). Ces deux valeurs traduisent une élimination relativement rapide du ^{110m}Ag en comparaison des données obtenues, avec la même espèce, pour d'autres radionucléides, tel que le ^{65}Zn , le ^{137}Cs , le ^{54}Mn et le ^{60}Co (BAUDIN, 1983 ; FRITSCH et BAUDIN, 1984 ; LAMBRECHTS, 1984 ; FRITSCH, 1986). En ce qui concerne le ^{110m}Ag il n'y a pas à notre connaissance de données bibliographiques relatives à son élimination par les poissons. Pour le crabe *Carcinus maenas* AMIARD (1978) cite des périodes biologiques de 8 et 480 jours.

2.2.2.2.2 Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe

Après 42 jours de décontamination, le classement des organes et tissus en fonction de leur concentration en ^{110m}Ag est globalement le même que celui constaté en fin de phase d'accumulation (Tableau 24 et Fig. 27). Cependant, en valeur absolue, il apparaît que l'importance de l'élimination est notablement différente. Ainsi par rapport à sa valeur initiale, la concentration du radionucléide résiduel est de 16 % pour le rein, 18 % pour les muscles et 19 % pour le tube digestif. A l'opposé, il est de 32 % pour la tête, 33 % pour le foie et 34 % pour les branchies. En ce qui concerne la répartition proprement dite de l'argent 110m résiduel (Fig. 28) il faut souligner l'importance accrue du foie et le maintien à un niveau élevé du pourcentage relatif au tube digestif, viscères liés aux activités d'assimilation et d'excrétion.

TABLEAU 16
Concentration de l'eau en ^{125}Sb
pendant la phase d'accumulation ($\text{Bq}\cdot\text{ml}^{-1}$)

Temps (jours)	Eau brute	Eau filtrée à $0,45 \mu\text{m}$
0	1048	1056
1	1017	1012
3	1019	1034
6	1043	1047
10	1046	1071
14	1075	1075
17	862	892
20	916	944

TABLEAU 17
Evolution des paramètres relatifs à l'accumulation de l'antimoine ^{125}Sb
par les carpes(1)

Temps (jours)	Masse des carpes (g)	^{125}Sb dans les poissons		
		Quantité totale (Bq)	Concentration ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$)	Facteur de concentration
1	$2,05 \pm 0,12$	106 ± 71	50 ± 32	0,05
3	$2,05 \pm 0,13$	293 ± 120	143 ± 58	0,14
6	$2,07 \pm 0,13$	307 ± 196	146 ± 41	0,14
10	$2,04 \pm 0,12$	279 ± 67	138 ± 32	0,13
14	$1,99 \pm 0,10$	208 ± 43	104 ± 19	0,09
17	$1,90 \pm 0,11$	237 ± 41	126 ± 22	0,14
20	$1,86 \pm 0,19$	186 ± 88	161 ± 31	0,17

(1) Dans les tableaux figurent les valeurs moyennes des paramètres affectées de leurs intervalles de confiance calculés d'après la formule t_{xs}/\sqrt{n} dans laquelle "t" est la variable de Student pour 95 % de probabilité, "s" l'estimation de l'écart-type et "n" le nombre d'individus.

TABLEAU 18
Concentration et distribution du ^{125}Sb dans les organes des poissons
après 20 jours d'accumulation

Organes	Concentration en ^{125}Sb (Bq.g-1 frais)	Facteur de concentration	% de la radioactivité totale
Foie	121	0,13	2,04
Tube digestif	313	0,34	5,39
Reins	126	0,14	0,44
Rate	97	0,11	0,12
Vessie Natatoire	133	0,15	0,46
Peau	139	0,15	11,89
Squelette	222	0,24	14,77
Branchies	223	0,24	6,86
Tête	282	0,31	49,35
Muscles	92	0,10	8,69

TABLEAU 19
Evolution des paramètres relatifs à l'élimination de l'antimoine 125
par les carpes

Temps (jours)	Masse des carpes (g)	^{125}Sb dans les poissons			
		Quantité totale (Bq) (%) [*]		Concentration (Bq.g ⁻¹) % (*)	
0	5,0 ± 0,5	480 ± 79	100	96 ± 12	100
1	4,8 ± 0,6	321 ± 47	66,9	68 ± 10	70,8
2	4,7 ± 0,5	306 ± 71	63,8	65 ± 11	67,7
4	4,6 ± 0,5	278 ± 46	57,9	60 ± 10	62,5
7	4,7 ± 0,5	179 ± 39	37,3	38 ± 7	39,6
8	4,8 ± 0,5	206 ± 49	42,9	43 ± 9	44,8
10	4,8 ± 0,4	153 ± 40	31,9	31 ± 7	32,3
14	4,9 ± 0,5	145 ± 52	30,2	29 ± 10	30,2
18	5,1 ± 0,5	123 ± 41	25,6	24 ± 8	25,0
21	5,4 ± 0,5	124 ± 29	25,8	23 ± 5	24,0
28	5,4 ± 0,6	148 ± 28	30,8	27 ± 7	28,1

(*) % de la valeur initiale

TABLEAU 20
Concentration et distribution du ^{125}Sb dans les organes
des poissons après 28 jours d'élimination

Organes	Concentration en ^{125}Sb ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$)	% de la radioactivité totale
Foie	10	1,6
Tube digestif	18	3,7
Reins	12	0,4
Rate	3	0,0
Vessie Natatoire	0	0,0
Peau	45	22,5
Squelette	13	7,0
Branchies	15	2,1
Tête	39	52,7
Muscles	6	9,8

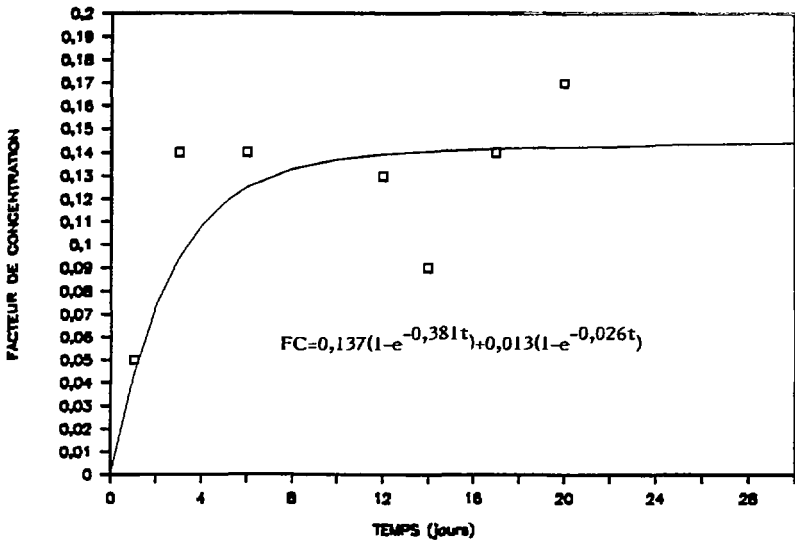


Fig.17 - Accumulation du ^{125}Sb par la carpe. Evolution du facteur de concentration

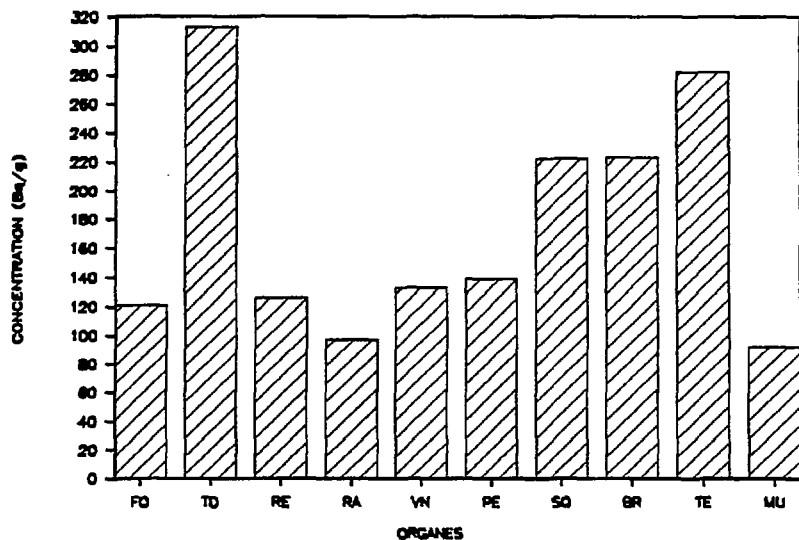


Fig.18 - Concentration du ^{125}Sb dans les principaux organes et tissus de la carpe après 20 jours d'accumulation.

Légende: FO = Foie

TD = Tube digestif

RE = Reins

RA = Rate

VN = Vessie natatoire

PE = Peau

SQ = Squelette

BR = Branchies

TE = Tête

MU = Muscle

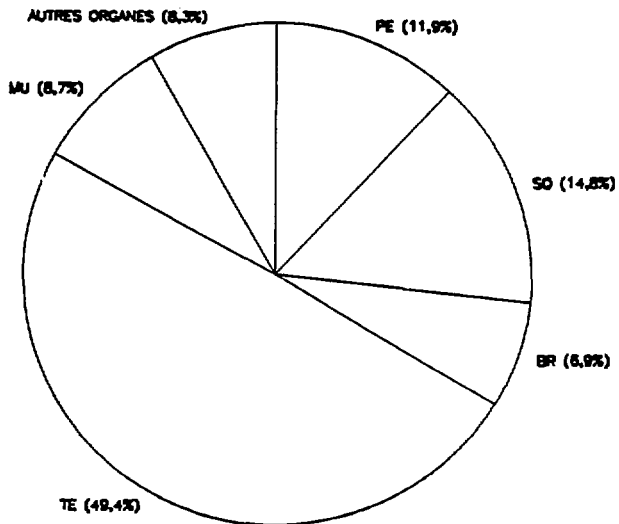


Fig.19 - Distribution du ^{125}Sb entre les principaux organes et tissus de la carpe après 20 jours d'accumulation (% de la quantité totale)

Légende: MU = Muscles PE = Peau TE = Tête
SQ = Squelette BR = Branchies

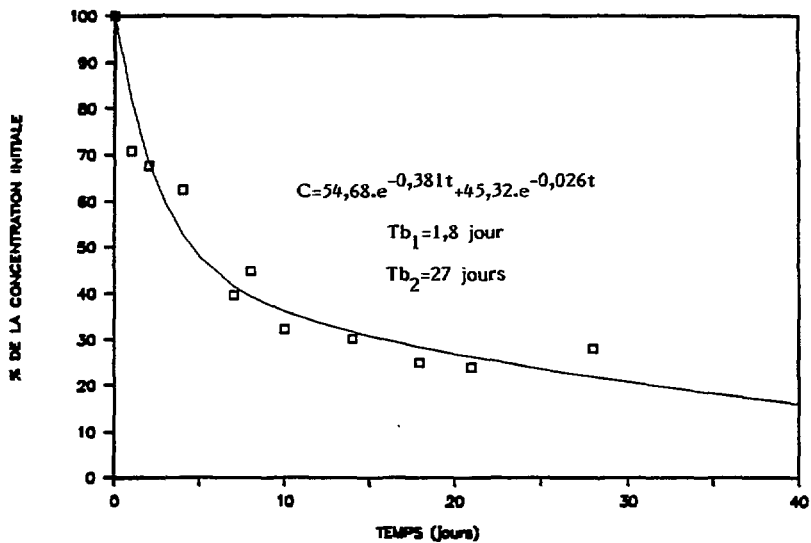


Fig.20 - Evolution de la concentration en ^{125}Sb des carpes au cours de la phase d'élimination.

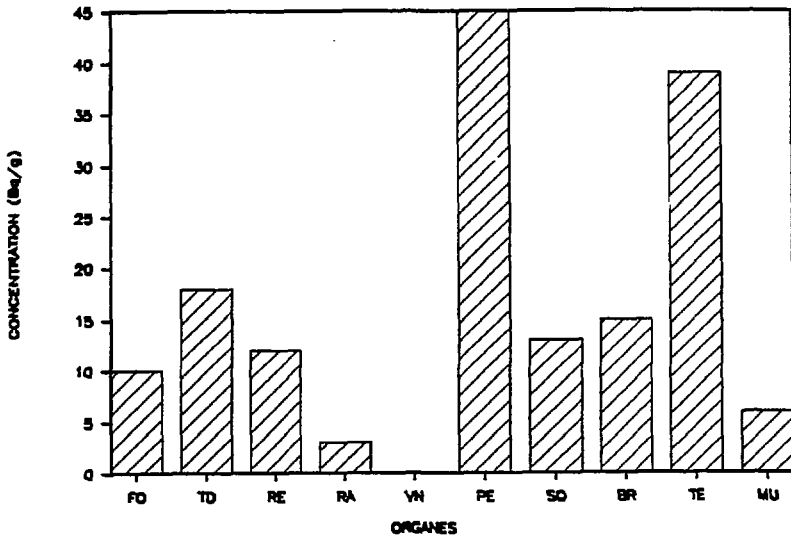


Fig.21 - Concentration du ^{125}Sb dans les principaux organes et tissus de la carpe après 28 jours d'élimination.

Légende: FO = Foie
TD = Tube digestif
RE = Reins
RA = Rate
VN = Vessie natatoire
PE = Peau
SQ = Squelette
BR = Branchies
TE = Tête
MU = Muscle

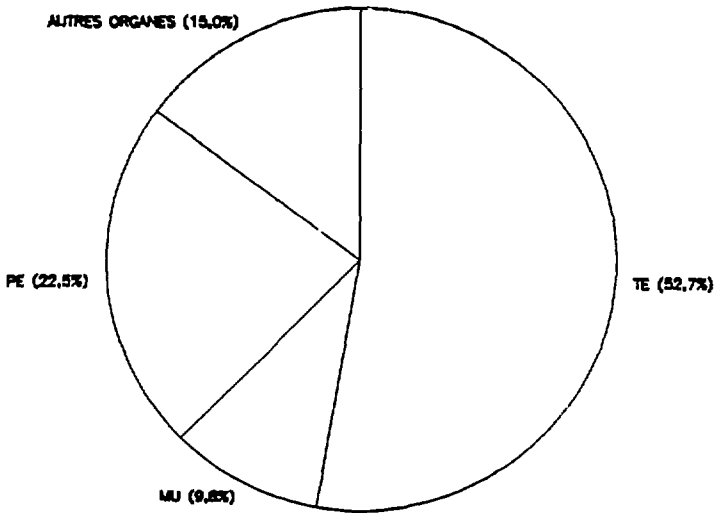


Fig.22 - Distribution du ^{125}Sb résiduel entre les principaux organes et tissus de la carpe après 28 jours d'élimination (% de la quantité totale).

Légende: PE = Peau; TE = Tête; MU = Muscle.

TABLEAU 21
Evolution des paramètres relatifs à l'accumulation directe
de l'argent ^{110m}Ag par les carpes

Temps (jours)	Masse des carpes (g)	^{110m}Ag dans les poissons		
		Quantité totale (Bq)	Concentration (Bq.g ⁻¹)	Facteur * de concentration
2	1,46 ± 0,10	791 ± 327	531 ± 205	35
6	1,58 ± 0,09	1736 ± 656	1116 ± 440	73
9	1,66 ± 0,10	628 ± 301	382 ± 190	25
15	1,70 ± 0,12	1575 ± 605	917 ± 353	60
19	1,57 ± 0,11	2711 ± 547	1814 ± 601	119
23	1,80 ± 0,11	3021 ± 493	1694 ± 288	111
27	1,87 ± 0,12	2282 ± 790	1224 ± 424	80
30	1,93 ± 0,13	2401 ± 717	1222 ± 376	80
34	1,95 ± 0,11	2747 ± 682	1413 ± 348	93
37	2,00 ± 0,09	3179 ± 532	1591 ± 263	105
41	1,93 ± 0,08	3226 ± 910	1681 ± 505	110

* calculé en fonction de la radioactivité de l'eau filtrée

TABLEAU 22
Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes
des poissons après 41 jours d'accumulation par la voie directe

Organes	Concentration en ^{110m}Ag (Bq.g ⁻¹ frais)	Facteur de concentration	% de la radioactivité totale
Foie	13 162	866	30,1
Tube digestif	8 513	560	43,7
Reins	4 552	299	2,7
Rate	2 354	155	0,9
Vessie Natatoire	1 658	109	0,6
Peau	577	39	3,5
Squelette	544	36	3,3
Branchies	544	36	0,8
Tête	506	33	7,3
Muscles	498	33	7,7

TABLEAU 23
Evolution des paramètres relatifs à l'élimination par les carpes
de l'argent 110m accumulé par la voie directe

Temps (jours)	Masse des carpes (g)	110m Ag dans les poissons			
		Quantité totale (Bq)	(%)	Concentration (Bq.g ⁻¹)	(%)*
0	1,93 ± 0,08	3225 ± 909	100	1681 ± 505	100
1	1,99 ± 0,11	2727 ± 758	84,6	1379 ± 403	82,0
3	1,98 ± 0,11	2333 ± 660	72,3	1155 ± 398	68,7
6	2,03 ± 0,13	2267 ± 679	70,3	1129 ± 373	67,2
10	2,12 ± 0,12	1965 ± 610	60,9	943 ± 329	56,1
14	2,05 ± 0,13	1635 ± 542	50,7	821 ± 314	48,8
27	1,98 ± 0,10	1367 ± 460	42,4	703 ± 260	41,8
34	2,60 ± 0,17	1108 ± 421	34,4	440 ± 187	26,2
42	2,85 ± 0,18	1001 ± 380	31,0	365 ± 159	21,7

(*) % de la valeur initiale

TABLEAU 24

Concentration et distribution du 110mAg dans les organes
des poissons après 42 jours d'élimination
(accumulation préalable par la voie directe)

Organes	Concentration en 110mAg (Bq.g ⁻¹)	% de la radioactivité totale
Foie	4 404	36,3
Tube digestif	1 675	35,2
Reins	754	3,0
Rate	500	0,6
Vessie Natatoire	465	0,7
Peau	148	3,5
Squelette	141	3,6
Branchies	186	2,1
Tête	162	9,0
Muscles	88	5,9

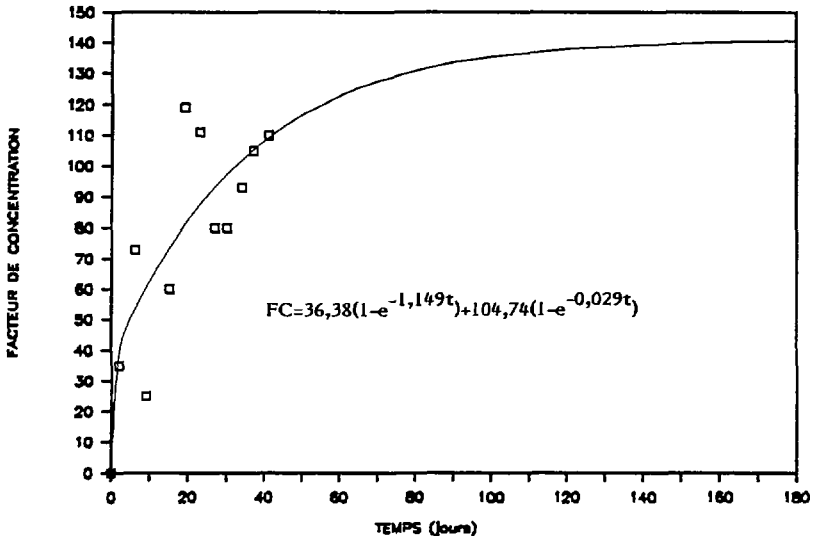


Fig.23 - Accumulation du ^{110m}Ag par la carpe. Evolution du facteur de concentration.

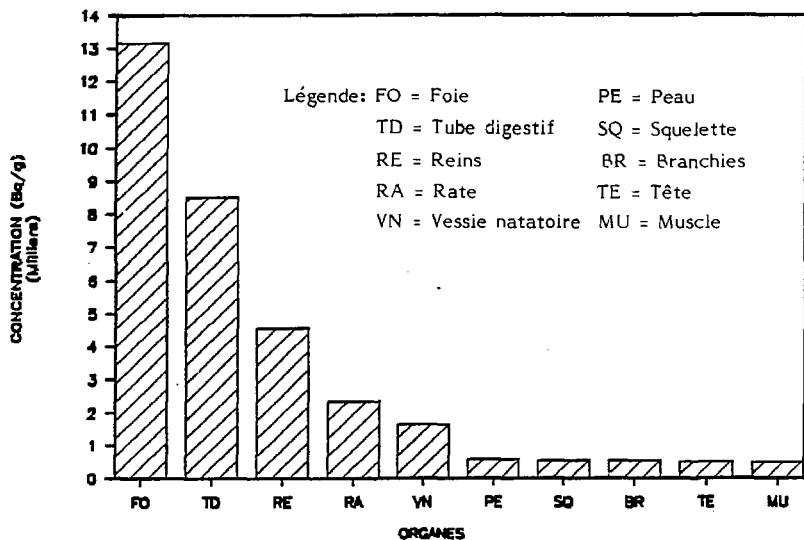


Fig.24 - Concentration du ^{110m}Ag dans les principaux organes et tissus de la carpe après 41 jours d'accumulation par la voie directe.

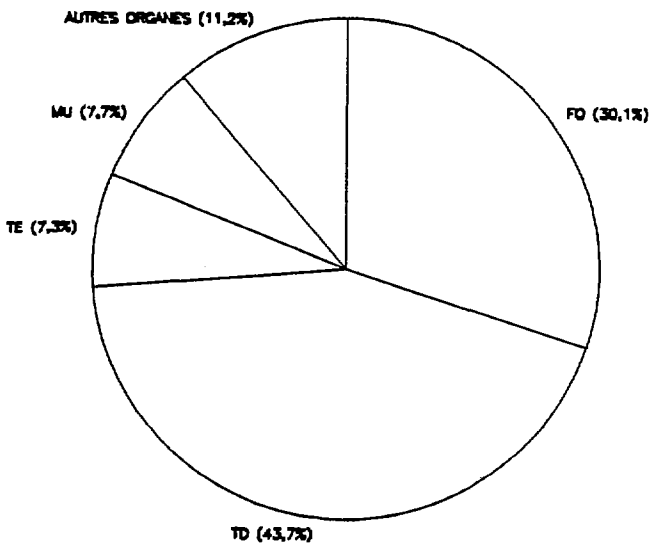


Fig.25 - Distribution du ^{110m}Ag entre les principaux organes et tissus de la carpe après 41 jours d'accumulation par la voie directe (% de la quantité totale).

Légende: MU = Muscles; TE = Tête; TD = Tube digestif; FO = Foie.

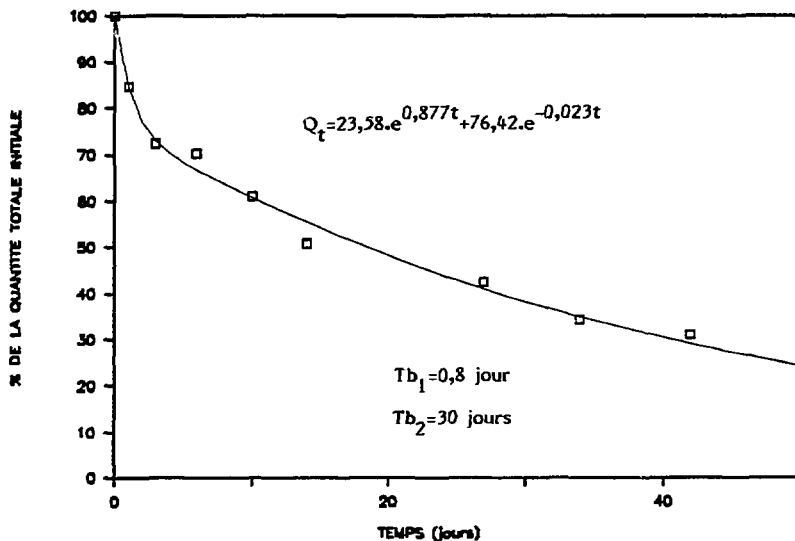


Fig.26 - Elimination par les carpes du ^{110m}Ag accumulé par la voie directe. Evolution de la quantité totale.

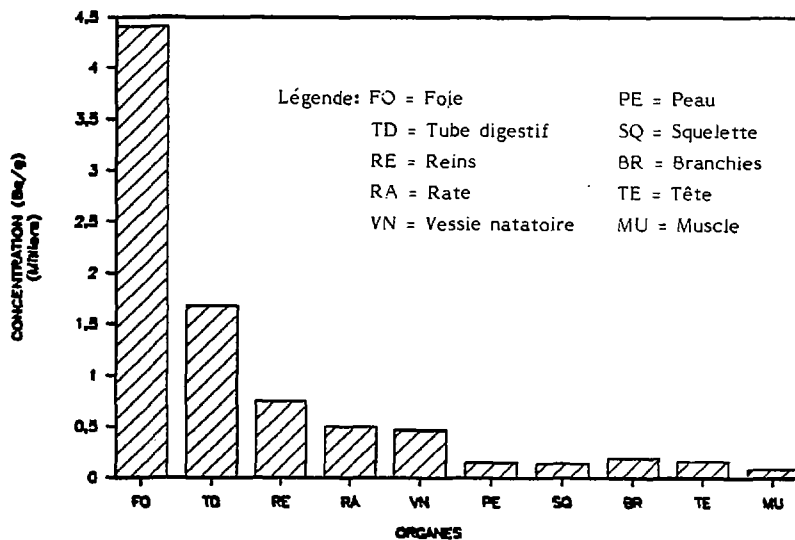


Fig.27 - Concentration du ^{110m}Ag dans les principaux organes et tissus de la carpe après 42 jours d'élimination (accumulation préalable par la voie directe).

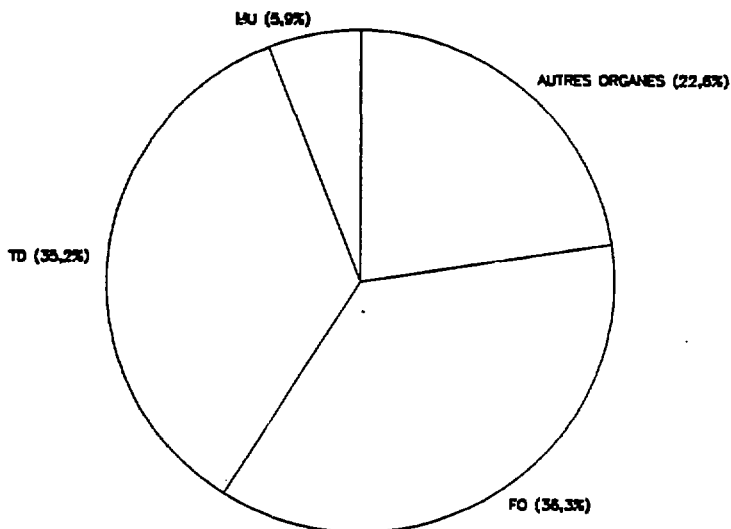


Fig.28 - Distribution du ^{110m}Ag résiduel entre les principaux organes et tissus de la carpe après 42 jours d'élimination exprimée en % de la quantité totale (accumulation préalable par la voie directe).

Légende: MU = Muscle; TD = Tube digestif; FO = Foie.

3. BIOACCUMULATION PAR LA VOIE TROPHIQUE ET ELIMINATION DE L'ARGENT 110m PAR *Cyprinus carpio*

3.1 Matériel et méthodes

L'étude est menée avec un lot homogène de 10 carpes d'une masse initiale d'environ 3 g, placées individuellement dans des petits bacs avec 1 litre d'eau de source maintenue à une température de $20 \pm 2^\circ\text{C}$. Cette eau est changée tous les jours avant la distribution de la nourriture. Cinq jours par semaine, les carpes reçoivent deux repas quotidiens constitués de gammarus (*Gammarus pulex*) qui sont de petits crustacés benthiques. Le nombre de gammarus distribués lors de chaque repas est passé de 5 à 8 au cours des 8 semaines de l'expérience, corrélativement à l'évolution de la masse des individus. Lors de chaque repas, la ration alimentaire était complétée par de la nourriture industrielle, distribuée sous forme de granulés, afin de mieux équilibrer l'alimentation des poissons. Ces derniers ont reçu environ 20 mg par jour de cet aliment composé de 12 % de minéraux, 8 % de lipides, 58 % de protéines et contenant des oligoéléments et des vitamines. Les gammarus étaient préalablement contaminés pendant 7 jours dans une eau contenant une très forte concentration de ^{110}mAg . L'ensemble des caractéristiques des rations alimentaires distribuées aux poissons pendant l'expérience sont présentées dans le tableau 25.

Une fois par semaine, le lundi matin, les poissons étaient pesés et préparés en vue de la mesure de leur radioactivité. Cette opération était effectuée plus de 70 heures après l'ingestion du dernier repas contaminé ce qui élimine la possibilité de prendre en compte la fraction du radionucléide non digérée et celle renfermée dans les fèces en voie d'évacuation. Les poissons étaient légèrement anesthésiés dans une solution de MS 222 afin d'assurer une bonne reproductibilité de la géométrie pour mesure de la radioactivité.

A l'issue des 8 semaines d'étude de l'accumulation, les carpes ont été placées en décontamination, c'est-à-dire qu'à partir du 57ème jour de l'expérience elles ont reçu de la nourriture inactive.

Afin d'étudier l'accumulation du ^{110m}Ag au niveau des principaux organes et tissus de la carpe, un deuxième lot de 10 individus a été placé dans un bac de 10 litres d'eau. Ils ont reçu les mêmes repas contaminés, dans les mêmes conditions et selon le même protocole opératoire que dans le cas des poissons isolés.

3.2 Résultats et discussions

3.2.1 Phase d'accumulation du radionucléide

3.2.1.1 *Cinétique de l'accumulation*

Pendant la phase de contamination, on constate une croissance pondérale exponentielle très importante des carpes (Fig. 29) qui se traduit par un gain de masse de l'ordre de 90 % (Tableau 26). Ces faits indiquent une synthèse protéique satisfaisante et suggèrent par conséquent que les processus physiologiques sont normaux et que l'assimilation du ^{110m}Ag n'a pas été affectée par des anomalies du métabolisme.

L'ingestion, par les poissons, de nourriture contaminée se traduit par une accumulation progressive d'argent 110m (Tableau 26). L'évolution de la concentration du radionucléide correspond à un modèle exponentiel simple (Fig. 30) dont l'équation montre que l'équilibre sera atteint après 110 jours environ, ce qui représente une durée relativement faible comparée à celles constatées pour d'autres radionucléides comme le ^{65}Zn (BAUDIN, 1985) ou le ^{60}Co (BAUDIN & FRITSCH, 1987) par exemple.

La quantité totale fixée et la concentration d'un radionucléide constituent des paramètres radioécologiques très importants. Dans le cas d'un transfert trophique, le facteur de transfert* représente une donnée essentielle pour évaluer la bioamplification effective ou potentielle du polluant considéré. Dans notre expérience ce facteur augmente régulièrement

* $[\text{^{110m}Ag}]$ dans le consommateur/ $[\text{^{110m}Ag}]$ dans la nourriture

au fur et à mesure de l'ingestion des repas contaminés (Tableau 26). Cette croissance correspond à un modèle exponentiel (Fig. 31) qui peut être caractérisé par l'équation suivante :

$$FT = 2,74 \cdot 10^{-3} (1 - e^{-1,938t}) + 21,33 \cdot 10^{-3} (1 - e^{-0,042t})$$

Cette évolution permet de penser que même à long terme, il n'y aura pas bioamplification du radionucléide lors du transfert proie-prédateur. En effet, l'équation indique que la valeur maximale, atteinte après 110 jours environ, sera de l'ordre de $24 \cdot 10^{-3}$ c'est-à-dire très largement inférieure à 1.

La valeur de tous les paramètres radioécologiques évoqués est liée à la capacité d'accumulation par les poissons du ^{110m}Ag contenu dans la nourriture ingérée. Cette capacité peut être exprimée par le facteur de rétention qui représente la quantité de radionucléide accumulée par le consommateur par rapport à la quantité totale ingérée. Dans l'étude présentée, le facteur de rétention décroît exponentiellement en fonction du temps (Tableau 26 et Fig. 32) pour atteindre une valeur de $15,8 \pm 4,9 \cdot 10^{-3}$ après l'ingestion de 40 repas contaminés. Les valeurs des facteurs de transfert et de rétention obtenus dans nos expériences pour le ^{110m}Ag ne peuvent être discutées dans la mesure où il n'y a pas à notre connaissance de travaux relatifs à la contamination d'un poisson dulçaquicole par la voie trophique. A titre de comparaison, nous pouvons toutefois indiquer que, pour la même espèce, ces deux facteurs ont été respectivement évalués à 10^{-1} et $5 \cdot 10^{-2}$ pour le ^{65}Zn (BAUDIN, 1985) et à $10,5 \cdot 10^{-3}$ et $3,3 \cdot 10^{-3}$ pour le ^{60}Co (BAUDIN & FRITSCH, 1987).

3.2.1.2 Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les tissus de la carpe

Après 8 semaines de contamination par la voie digestive, le foie est l'organe qui présente la plus forte concentration en ^{110m}Ag . Celle-ci ($2308 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$) est deux fois plus élevée que dans le tube digestif ($1186 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$) alors que les valeurs relatives aux autres organes sont généralement inférieures à $100 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ (Tableau 27 et Fig. 33). L'importance du foie en tant qu'"organe cible" du ^{110m}Ag accumulé par la voie trophique est accentué par les données concernant la distribution du radionucléide.

On constate en effet (Fig. 34) qu'il renferme près de 50 % du ^{110m}Ag total, valeur supérieure à la proportion trouvée à l'issue de la contamination par la voie directe (30,1 %). A ce sujet, on note une inversion de l'importance de ces deux organes en fonction de la voie d'adsorption du ^{110m}Ag . Ce n'est pas le cas pour les autres organes, les différences constatées ne sont pas significatives.

3.2.2 Phase d'élimination du radionucléide

3.2.2.1 *Cinétique de l'élimination*

Au cours de la phase de décontamination, la croissance pondérale des carpes (Tableau 28 et Fig. 35) s'est poursuivie selon un rythme comparable à celui observé pendant la phase d'accumulation, comme l'atteste la similitude des pentes des exponentielles. Après 49 jours, cette croissance se traduit par un gain de masse de l'ordre de 86 %.

L'élimination du ^{110m}Ag accumulé par la voie trophique est un processus exponentiel se déroulant en une seule phase (Fig. 36). Cette évolution correspond à une période biologique de l'ordre de 21 jours, valeur qui indique une décontamination rapide des poissons. A la fin des 49 jours de la phase d'élimination la quantité totale excrétée est proche de 80 %. La concentration du radionucléide résiduel n'est plus que de 12 % de sa valeur initiale en raison de la dilution biologique due au grossissement des individus.

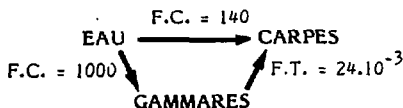
3.2.2.2 *Concentration et distribution du ^{110m}Ag dans les organes de la carpe*

A la fin de la phase de décontamination on constate que la concentration de l'argent 110m est toujours nettement plus élevée dans le foie et le tube digestif que dans les autres organes (Tableau 29 et Fig. 37). La forte radioactivité du tube digestif après 7 semaines d'ingestion de nourriture non contaminée peut paraître surprenante. Elle doit être interprétée comme le résultat d'une excrétion du radionucléide. Cette même interprétation paraît devoir s'appliquer à la forte concentration trouvée dans le tube digestif après la phase d'accumulation par la voie directe.

La répartition du radionucléide (Tableau 29 et Fig. 38) tend à confirmer l'hypothèse émise ci-dessus. En effet, on constate une importance accrue du tube digestif dans lequel est retrouvé près de la moitié du ^{110m}Ag résiduel. La forte diminution ne nous paraît pas physiologiquement significative étant donné que la concentration ne subit pas une décroissance de la même ampleur. Cette évolution s'explique, en partie au moins, par le fait que la masse relative de cet organe est chez les individus placés en décontamination nettement inférieure à celle évaluée chez les individus en fin de phase d'accumulation.

3.2.3 Estimation de l'importance relative de l'eau et de la nourriture dans la bioaccumulation du ^{110m}Ag par *Cyprinus carpio*

La bioaccumulation du ^{110m}Ag par la voie directe est un processus relativement intense étant donné que le facteur de concentration est de 140. Comparativement, la valeur maximale du facteur de transfert du radionucléide par la voie trophique, qui est de $24 \cdot 10^{-3}$ apparaît bien faible. Toutefois, la comparaison directe de ces deux facteurs n'a pas grande signification et ne permet pas de préjuger de l'importance relative des deux voies de contamination. En effet, dans le cas du transfert trophique, il faut tenir compte du facteur de concentration du radionucléide relatif à la proie ou aux proies consommées. A ce sujet, il faut signaler que très généralement on constate que ce facteur a une valeur d'autant plus élevée que l'espèce proie considérée appartient à un niveau trophique inférieur (COUGHTREY et al., 1985). Ainsi une expérience de contamination par le ^{110m}Ag a permis d'évaluer pour les gammares un facteur de concentration en fonction du poids frais d'environ 1000, c'est-à-dire 7 fois plus que la valeur trouvée pour les carpes. En appliquant les différents facteurs au cours des expériences de bioaccumulation du ^{110m}Ag par la carpe il est possible de quantifier l'importance des deux voies de transfert ainsi que le présente le schéma suivant :



D'après les données indiquées on constate que le transfert par la voie trophique aboutit pour la carpe à un facteur de concentration par rapport à l'eau de 24 ($1000 \times 24 \cdot 10^{-3}$). Cette valeur reste inférieure à celle résultant de la contamination par la voie directe (140) mais révèle une possibilité réelle de bioaccumulation du ^{110m}Ag par la voie trophique. L'importance de cette voie est en fait encore plus marquée si l'on prend en compte les situations pouvant prévaloir *in situ*. Tout d'abord il faut souligner que dans le milieu naturel les poissons ingèrent des organismes qui peuvent se contaminer, à partir de l'eau, à un niveau nettement plus élevé que les gammares, du fait, en particulier, de la très forte adsorption du ^{110m}Ag . C'est le cas notamment des organismes du phyto et du zooplancton qui présentent une très grande surface par rapport à leur volume et pour lesquels on peut prévoir des valeurs du facteur de concentration 10 voire 100 fois supérieures à celle concernant les gammares. Dans ces conditions, il est incontestable que la consommation de ces organismes doit conduire pour les prédateurs à des facteurs de concentration par rapport à l'eau nettement plus élevés que ceux résultant de la contamination par la voie directe.

En second lieu, l'importance de la voie trophique est accentuée par le fait que ce mode de contamination, contrairement à la voie directe, a un caractère chronique à moyen et long terme. En effet, lors de l'arrivée d'un flux d'eau contaminée dans un écosystème, tous les organismes vont subir une contamination à partir de l'eau qui cessera aussitôt que le polluant aura disparu. Par contre, pour les espèces animales, et notamment les poissons qui occupent les niveaux trophiques les plus élevés, l'absorption du ou des radionucléides va se poursuivre avec la consommation d'organismes qui sont encore contaminés pour plusieurs jours ou même plusieurs semaines. De l'ensemble des résultats obtenus et en fonction des considérations relatives aux transferts dans les écosystèmes, il est possible de conclure que dans le cas du ^{110m}Ag la voie trophique est au moins aussi importante que la voie directe dans le processus de contamination de la carpe et probablement des poissons en général.

TABLEAU 25

Caractéristique de la nourriture contaminée distribuée aux carpes durant la phase d'accumulation du ^{110}mAg par la voie trophique
(valeurs moyennes pour 1 individu)

N° semaine	Masse des repas (g) ⁽¹⁾		^{110}mAg dans la nourriture			
	Hebdomadaire	Cumulée	Quantité totale (Bq)		Concentration (Bq.g ⁻¹)	
			Hebdomadaire	Cumulée	Nourriture hebdomadaire	Nourriture totale
1	0,704	0,704	3670 ± 164	3670 ± 164	5213 ± 233	5213 ± 233
2 (2)	0,640	1,344	2375 ± 149	6045 ± 180	3710 ± 233	4498 ± 134
3	0,896	2,240	6027 ± 309	12736 ± 1468	6726 ± 344	5686 ± 655
4	0,960	3,200	7454 ± 349	20189 ± 1770	7826 ± 342	6309 ± 553
5	1,024	4,224	12091 ± 267	32280 ± 1750	11808 ± 261	7642 ± 414
6	1,120	5,344	9777 ± 567	41930 ± 1990	8730 ± 566	7846 ± 372
7	0,992	6,336	7095 ± 321	49025 ± 2115	7152 ± 323	7736 ± 334
8	1,280	7,616	8969 ± 265	57990 ± 1990	7007 ± 207	7615 ± 261

(1) Composante contaminée des repas (gammare)

(2) 4 jours de distribution au lieu de 5 habituellement

TABLEAU 26

Evolution des paramètres relatifs aux carpes durant la phase d'accumulation du ^{110}mAg par la voie trophique

Temps (jours)	Masse des carpes (g)	^{110}mAg dans les carpes			
		Quantité totale (Bq)	Concentration (Bq.g ⁻¹)	Facteur de transfert (x 10 ⁻³)	Facteur de rétention (x 10 ⁻³)
0	3,0 ± 0,1	0	-	-	-
8	3,1 ± 0,1	142 ± 21	46 ± 7	8,8 ± 1,3	35,8 ± 6,8
14	3,2 ± 0,1	158 ± 45	50 ± 13	13,4 ± 3,1	26,0 ± 7,2
21	3,4 ± 0,1	339 ± 50	98 ± 13	14,7 ± 2,0	26,9 ± 4,3
28	3,9 ± 0,2	512 ± 127	132 ± 31	17,0 ± 4,1	25,8 ± 7,0
35	4,2 ± 0,2	710 ± 270	175 ± 51	14,8 ± 4,5	23,3 ± 7,9
42	4,8 ± 0,3	880 ± 240	182 ± 44	21,3 ± 5,9	21,4 ± 6,3
49	5,2 ± 0,3	852 ± 228	164 ± 42	23,1 ± 6,3	17,7 ± 5,2
56	5,6 ± 0,3	902 ± 264	159 ± 45	22,7 ± 6,1	15,8 ± 4,9

TABLEAU 27

Concentration et distribution dans les organes de la carpe
du ^{110m}Ag accumulé par la voie trophique
(valeurs relatives aux 10 individus)

Organes	Masse		^{110m}Ag dans les organes		
	g (1)	%	Quantité totale (1) (Bq)	Concentration (%)	Concentration (Bq.g ⁻¹)
Peau	6,37	10,4	40	2,7	63,4
Branchies	1,96	3,2	97,3	0,6	49,6
Tube digestif	3,95	6,4	4685,0	31,0	1186,0
Foie	3,20	5,2	7387,0	48,8	2309,0
Reins	0,59	1,0	83,4	0,6	141,3
Autres viscères (2)	1,58	2,6	58,7	0,4	37,2
Tête	16,67	27,2	1193,0	7,9	71,6
Muscles	18,39	30,0	668,0	4,4	36,3
Squelette	8,55	14,0	557,0	3,7	65,2

(1) Somme des 10 individus

(2) Rate - Coeur - Vessie natatoire

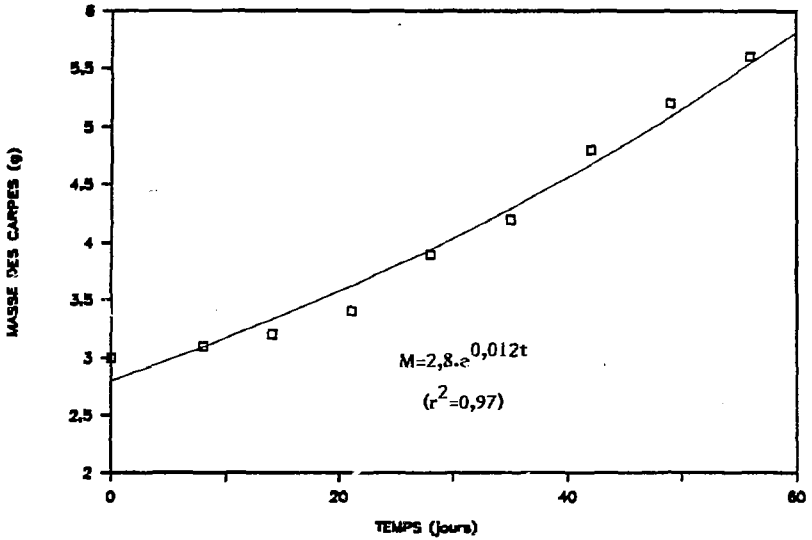


Fig.29 - Croissance pondérale des carpes durant la phase d'accumulation par la voie trophique.

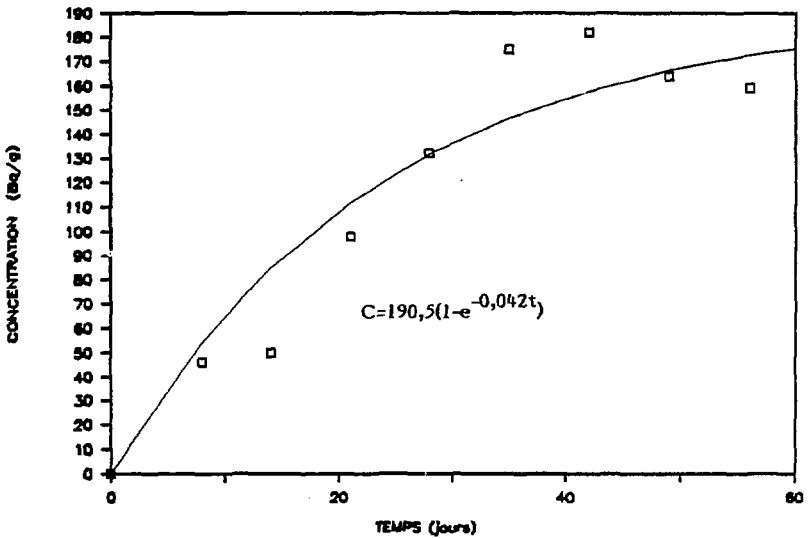


Fig.30 - Evolution de la concentration en ^{110m}Ag des carpes au cours de la phase d'accumulation par la voie trophique.

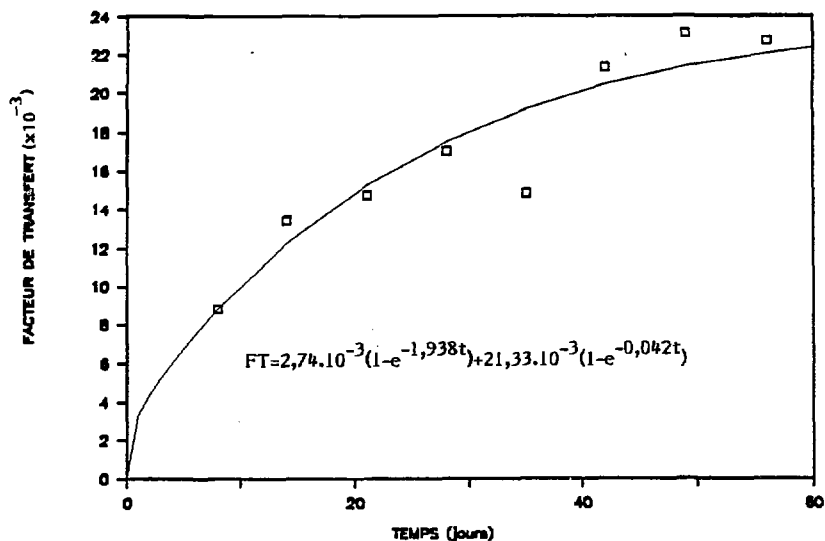


Fig.31 - Evolution du facteur de transfert du ^{110m}Ag au cours de la phase d'accumulation par la voie trophique.

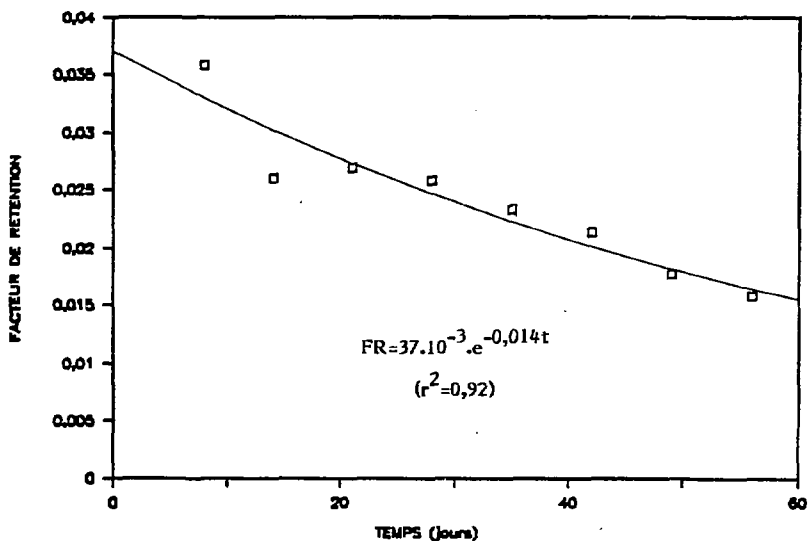


Fig.32 - Evolution du facteur de rétention du ^{110m}Ag chez les carpes au cours de la phase d'accumulation par la voie trophique.

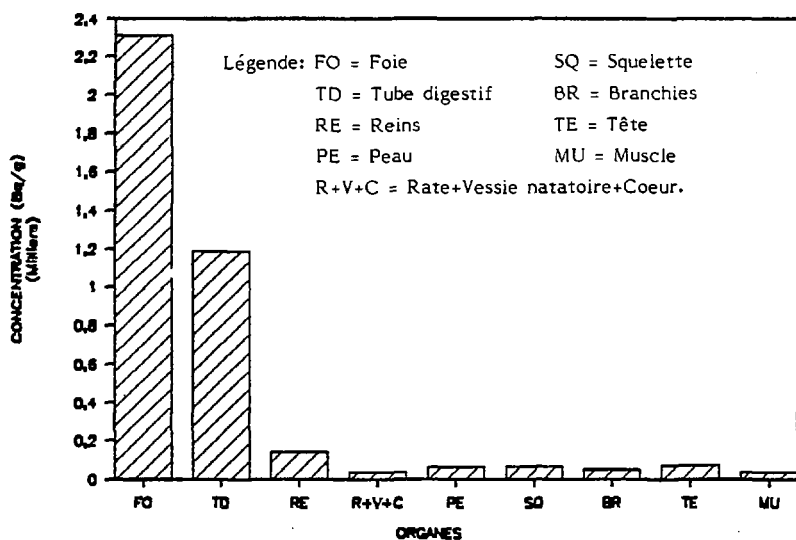


Fig.33 - Concentration du ^{110m}Ag dans les principaux organes et tissus de la carpe après 56 jours d'accumulation par la voie trophique.

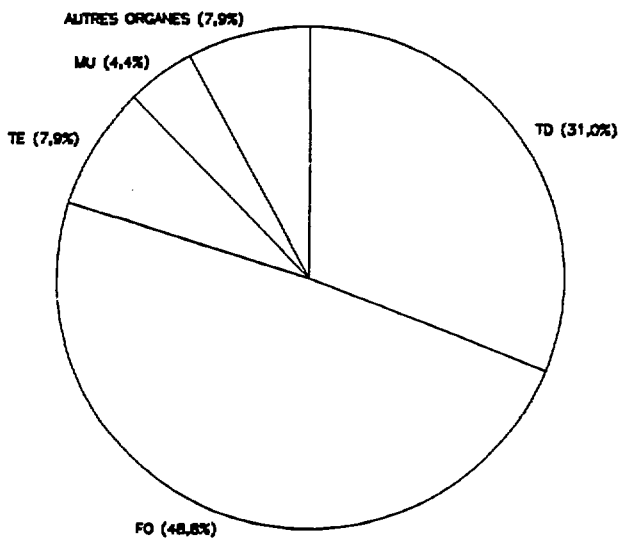


Fig.34 - Distribution du ^{110m}Ag entre les principaux organes et tissus de la carpe après 56 jours d'accumulation par la voie trophique (% de la quantité totale).

Légende: MU = Muscle; TE = Tête; TD = Tube digestif; FO = Foie.

TABLEAU 28

Paramètres relatifs à l'élimination par les carpes du ^{110m}Ag
préalablement accumulé par la voie trophique

Temps (jours)	Masse des carpes (g)	^{110m}Ag dans les carpes			
		Quantité totale		Concentration	
		Bq	%(*)	Bq.g ⁻¹	%(*)
0	5,6 ± 0,3	902 ± 264	100	159 ± 45	100
2	6,0 ± 0,4	814 ± 268	89,7 ± 6,3	134 ± 42	83,7 ± 5,6
3	6,1 ± 0,4	822 ± 251	91,2 ± 5,2	134 ± 38	84,3 ± 4,7
4	6,2 ± 0,4	787 ± 261	86,0 ± 4,7	126 ± 40	78,3 ± 4,5
7	6,1 ± 0,4	726 ± 215	88,3 ± 7,2	119 ± 35	74,1 ± 7,0
9	6,5 ± 0,5	701 ± 233	76,2 ± 7,0	107 ± 35	65,9 ± 6,3
11	6,5 ± 0,4	664 ± 210	73,2 ± 5,6	101 ± 30	63,4 ± 5,2
14	6,6 ± 0,5	637 ± 208	70,2 ± 5,2	96 ± 30	60,1 ± 4,7
17	7,1 ± 0,5	568 ± 189	61,4 ± 4,7	79 ± 25	48,7 ± 3,4
21	7,2 ± 0,5	477 ± 165	51,8 ± 6,3	65 ± 22	40,4 ± 5,4
24	8,1 ± 0,6	478 ± 175	50,9 ± 4,9	58 ± 20	35,3 ± 5,2
28	8,2 ± 0,6	384 ± 140	40,9 ± 4,7	46 ± 15	28,0 ± 2,7
35	9,3 ± 0,6	284 ± 100	30,3 ± 5,9	30 ± 9,9	19,5 ± 4,2
42	9,9 ± 0,7	231 ± 91	24,5 ± 4,0	23 ± 8,6	13,9 ± 2,5
49	10,4 ± 0,7	204 ± 91	21,3 ± 4,3	20 ± 8,5	11,6 ± 2,8

(*) % de la valeur initiale

TABLEAU 29

Concentration et distribution dans les organes de la carpe du ^{110m}Ag après
49 jours d'élimination
(accumulation préalable par la voie trophique)

Organes	Masse		^{110m}Ag dans les organes		
	g(1)	%	Quantité totale(1) Bq	Concentration %	Concentration (Bq.g ⁻¹)
Peau	11,1	11,8	141,0	5,8	12,6
Branchies	3,34	3,5	42,2	1,7	12,6
Tube digestif	6,43	6,8	1061,0	43,6	165,0
Foie	1,20	1,3	450,0	17,7	357,0
Reins	1,49	1,6	53,4	2,2	35,1
Autres viscères(2)	1,07	1,1	47,7	2	44,5
Tête	20,15	21,4	376,9	15,5	18,7
Muscles	38,94	41,3	146,2	6,0	3,8
Squelette	10,60	11,2	134,2	5,5	12,7

(1) Somme des 10 individus

(2) Rate - Coeur - Vessie natatoire

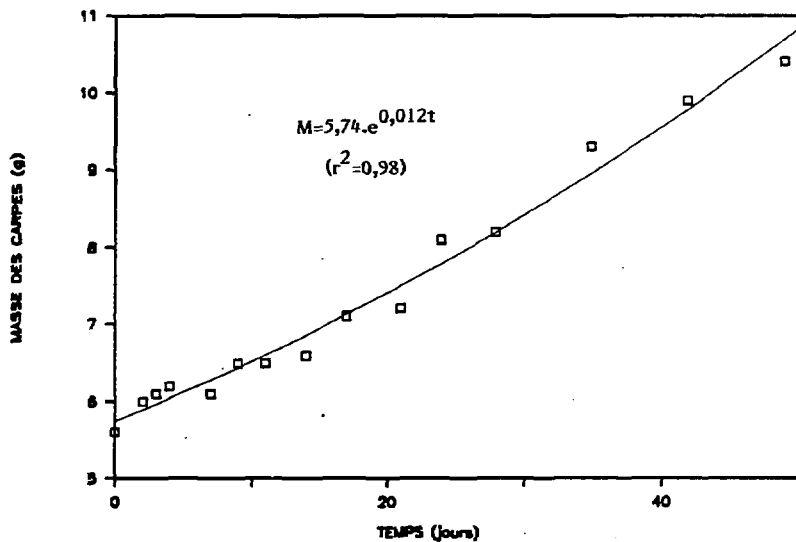


Fig.35 - Croissance pondérale des carpes durant la phase d'élimination du ^{110}mAg accumulé par la voie trophique.

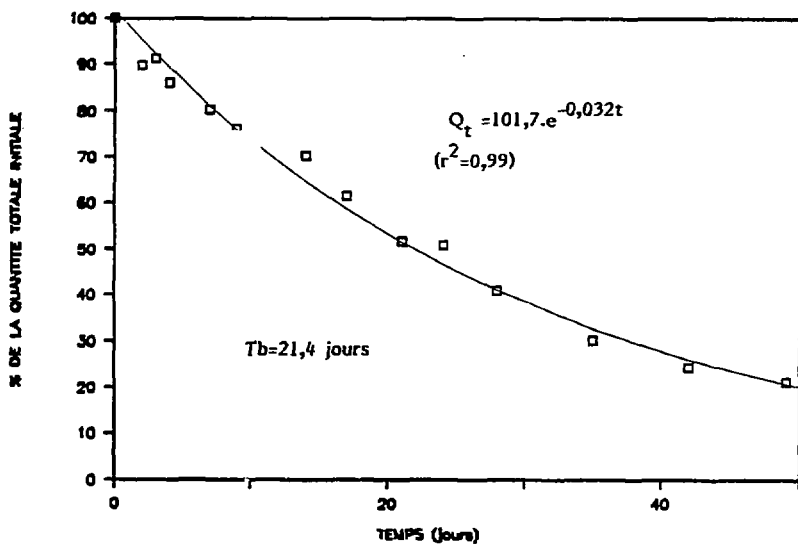


Fig.36 - Elimination par les carpes du ^{110}mAg accumulé par la voie trophique. Evolution de la quantité totale.

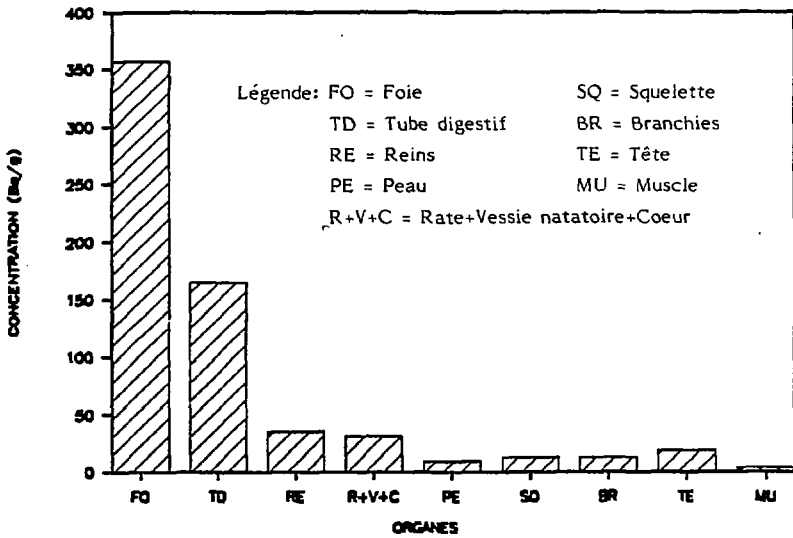


Fig.37 - Concentration du ^{110m}Ag résiduel dans les principaux organes et tissus de la carpe après 49 jours d'élimination (accumulation préalable par la voie trophique).

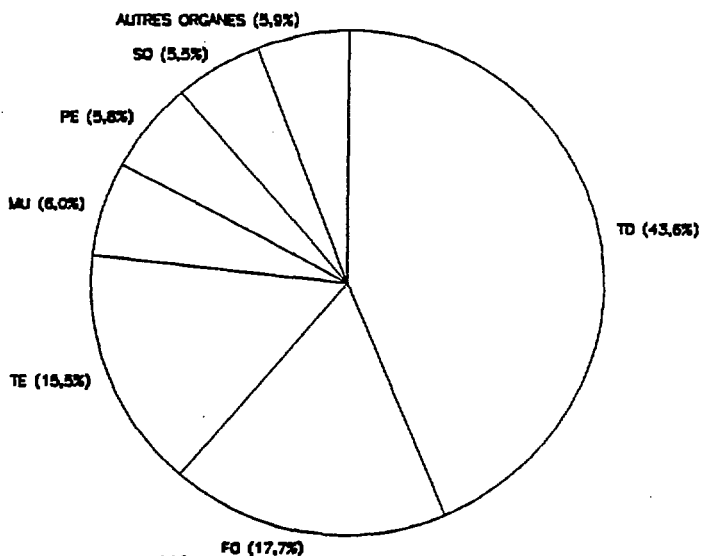


Fig.38 - Distribution du ^{110m}Ag résiduel entre les principaux organes et tissus de la carpe après 49 jours d'élimination exprimée en % de la quantité totale (accumulation préalable par la voie trophique).

Légende: SQ = Squelette; PE = Peau; MU = Muscle; TE = Tête;
FO = Foie; TD = Tube digestif.

CONCLUSION

Les différentes expériences réalisées montrent que le ^{125}Sb reste en solution dans l'eau mais peut se fixer sur le sédiment. Du point de vue physico-chimique, on constate qu'il n'apparaît pas de forme colloïdale et quasiment pas de formes particulaires, même en présence d'organismes vivants (poissons) dont la biomasse est importante par rapport au volume d'eau. Les formes ioniques du ^{125}Sb sont difficiles à déterminer avec fiabilité et certitude par l'utilisation de résines échangeuses d'ions. Toutefois, on peut conclure que la quasi-totalité du radionucléide est retenu par la résine anionique.

La bioaccumulation à partir de l'eau, du ^{125}Sb par la carpe est très faible, la valeur maximale du facteur de concentration étant de l'ordre de 0,15. Cette donnée, bien qu'indispensable, est insuffisante pour prévoir les possibilités potentielles de contamination de la faune ichthyologique par ce radionucléide. A cet effet, il serait bon d'étudier la contamination des poissons par la voie trophique et plus particulièrement par l'intermédiaire d'organismes benthiques et limicoles en raison de la fixation du radionucléide dans le sédiment.

Contrairement au ^{125}Sb , le ^{110m}Ag a une très forte tendance à s'adsorber sur tous les sites disponibles, qu'il s'agisse des parois des aquariums ou de particules en suspension. On constate d'autre part la formation de complexes colloïdaux et l'apparition de formes particulaires abondantes, notamment en présence de poissons et d'un lit de sédiment. Les formes dissoutes vraies représentent, en conséquence, moins de 50 % de la radioactivité totale, et la rétention la plus forte est généralement constatée sur la résine anionique.

La bioaccumulation par la carpe du ^{110m}Ag à partir de l'eau correspond à un facteur de concentration maximal de l'ordre de 140 ce qui est une valeur élevée par rapport à celles citées pour de nombreux autres radionucléides. L'élimination qui, comme l'accumulation, correspond à un phénomène biphasique, est un processus relativement rapide ; les deux périodes biologiques du radionucléide sont de 0,8 (T_{b1}) et 30 jours (T_{b2}).

L'accumulation du ^{110m}Ag par la voie trophique se traduit après l'ingestion de 40 repas en 8 semaines par un facteur de transfert de l'ordre de 24.10^{-3} . Le facteur de rétention, qui détermine le niveau de contamination, décroît exponentiellement en fonction du temps et passe de $35,8 \pm 6,8.10^{-3}$ après la première semaine à $15,8 \pm 4,9.10^{-3}$ après la huitième. Malgré ces faibles valeurs, la voie trophique apparaît au moins aussi importante que la voie directe dans la contamination de la carpe par le ^{110m}Ag , compte tenu de la très forte concentration du radionucléide par les organismes consommés. Cette constatation doit être confirmée pour la carpe et reste à démontrer pour d'autres espèces, notamment pour les carnivores.

Quelle que soit la voie d'adsorption, la concentration du ^{110m}Ag dans le foie et le tube digestif est très largement supérieure à celle mesurée dans les autres organes. Cette observation est également valable après plusieurs dizaines de jours d'élimination du radionucléide. Malgré la faible masse de ces deux organes la répartition du ^{110m}Ag accentue encore leur importance. Ainsi, selon le cas, ils renferment de 60 à 80 % du radionucléide total trouvé dans les poissons. De l'ensemble de ces données on peut déduire que le foie est un organe de stockage du ^{110m}Ag alors que la forte radioactivité du tube digestif est l'indice d'une excrétion du radionucléide.

Les diverses expériences menées avec le ^{110m}Ag ont permis de rassembler un nombre important de données radioécologiques. Toutefois, la présence de ce radionucléide dans les écosystèmes aquatiques, liée au fonctionnement des réacteurs à eau pressurisée et à l'accident de la centrale de Tchernobyl, nécessite de poursuivre des travaux expérimentaux corrélativement aux études *in situ*. A cet égard, il nous paraît absolument indispensable de porter une attention particulière au milieu sédimentaire en raison de la forte fixation du ^{110m}Ag constatée à ce niveau. D'autre part, l'influence de la forme physique du radionucléide sur son transfert dans les écosystèmes aquatiques doit être testée, de nombreuses informations montrant que des formes dissoutes coexistent avec des formes particulaires, de diamètres différents, qui sont largement majoritaires. En ce qui concerne plus particulièrement le transfert aux poissons, les études relatives à la voie trophique doivent être privilégiées avec la prise en compte de divers types de nourriture et la réalisation d'expériences portant sur une espèce carnivore comme la truite.

REMERCIEMENTS

En terminant ce rapport, nous tenons à vivement remercier Mr. J. GEORGES, Melle G. COURT et Mme Y. BAUDIN-JAULENT pour leur efficace collaboration à la réalisation du travail présenté.

Nous remercions également Mme G. MERLE qui par ses remarques et suggestions lors de la lecture des rapports provisoires a permis l'amélioration du texte primitif.

BIBLIOGRAPHIE

- AMIARD J.C. (1973). Etude expérimentale de l'accumulation de l'antimoine-125 par divers groupes d'organismes marins. *Rapport CEA-R-4530*. CEN Saclay, France : 15 p.
- AMIARD J.C. (1978). Contribution à l'étude de l'accumulation et de la toxicité de quelques polluants stables et radioactifs chez des organismes marins : l'antimoine, l'argent, le cobalt et le strontium chez des mollusques, des crustacés et des téléostéens. *Rapport CEA-R-4928*. CEN Saclay, France : 138 p.
- ANCELLIN J., GUEGUENIAT P. & GERMAIN P. (1979). *Radioécologie marine*. Eyrolles Ed., Paris : 444-446.
- AOYAMA I. & INOUE Y. (1973). Estimation and evaluation of radioactive contamination through a food web in an aquatic ecosystem. An application of the compartment model to transfer of radioactive substance through a food chain. *J. Rad. Res.* 14 : 375-381.
- BAUDIN J.P. (1974). Premières données sur l'étude expérimentale du cycle du zinc dans l'étang de l'Olivier. *Vie Milieu*, 24 (1) : 59-80.
- BAUDIN J.P., BOURDEAU F., FOULQUIER L. & LAMBRECHTS A. (1981). Etude expérimentale de la fixation et de la désorption du ^{22}Na par un poisson dulçaquicole, *Cyprinus carpio* L. *Note CEA-N-2250* CEN Cadarache : 13 p.
- BAUDIN J.P. (1981). Bilan du zinc ^{65}Zn absorbé par voie trophique chez *Anguilla anguilla* L. *Annls Limnol.* 17 (2) : 181-192.
- BAUDIN J.P. (1983). Etude expérimentale de la bioaccumulation et de l'excrétion du ^{65}Zn par un poisson dulçaquicole, *Cyprinus carpio* L. *Acta OEcologica, OEcol. Applic.*, 4 (2) : 139-149.
- BAUDIN J.P. (1985). Etude expérimentale de l'accumulation du zinc ^{65}Zn par voie trophique chez *Cyprinus carpio* L. *Verh. Internat. Verein. Limnol.* 22 : 2476-2480.

- BAUDIN J.P. & FRITSCH A.F. (1987). Retention of ingested ^{60}Co by a freshwater fish. *Water, air and soil pollut.* 36 : 207-217.
- COMAR C.L. (1955). *Radioisotopes in Biologie and Agriculture : Principles and Practice*. McGraw-Hill, New-York : 491 p.
- COUGHTREY P.J., JACKSON D. & THORNE M.C. (1983). *Radionuclides distribution in terrestrial and aquatic ecosystems. A critical review of data*. A.A. Balkema, Rotterdam, Vol. 3 : 287-304.
- COUGHTREY P.J., JACKSON D., JONES C.H., KANE P. & THORNE M.C. (1984). *Radionuclides distribution in terrestrial and aquatic ecosystems. A critical Review of data*. A.A. Balkema, Vol. 4 : 338-404.
- COUGHTREY P.J., JACKSON D. & THORNE M.C. (1985). *Radionuclides distribution in terrestrial and aquatic ecosystems. A critical review of data*. A.A. Balkema, Vol. 6 : 193 p.
- FERRER M.C. (1983). Etude expérimentale du comportement de huit radionucléides artificiels dans le cours terminal du Rhône. *Thèse de 3ème cycle, Univ. Bordeaux I* : 147 p.
- FRITSCH A.F. & BAUDIN J.P. (1984). Etude expérimentale de l'absorption et de la désorption par la carpe (*Cyprinus carpio*) d'un mélange de ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{137}Cs , ^{54}Mn et ^{22}Na . *Rapport CEA-R-5251*, CEN Saclay, 66 p.
- FRITSCH A.F. (1986). Etude expérimentale de l'accumulation et de l'élimination du cobalt 60 par *Cyprinus carpio* (L.). Evaluation de la contribution respective des voies trophique et directe dans la radioccontamination. Influence du facteur thermique. *Thèse de Docteur-Ingénieur, Univ. Aix-Marseille II* : 114 p.
- GOLDSTEIN R.A. and ELWOOD J.W. (1971). A two compartment, three parameters model for the comprison absorption and retention of ingested elements by animals. *Ecology*, 52 : 935-939.

- HAHN R.B. (1978). Antimony. In *Treatise on analytical chemistry*, Vol. 10 part. II. Edited by KOLTHOFF I.M. and ELVING P.J., Interscience Publication, John Wiley and sons, New-York : 271-330.
- KIMURA K.I. (1984). Accumulation and elimination of antimony-125 by a freshwater fish. *Natl. Inst. Radiol. Sci., Ann. Rept. (NIRS-24)* : 76-77.
- LAMBRECHTS A. (1984). Essai de modélisation du transfert du césium-137 dans les compartiments d'un écosystème simplifié. *Rapport CEA-R-5268* CEN Saclay : 181 p.
- LAMBRECHTS A. & FOULQUIER L. (1986). Experimental study of the transfers of a radionuclide mixture between water, sediment and fish. In *application of distribution coefficients to radiological assessment models*. Edited by sibley t;h; & MYTTENAERE C., Elsevier Applied Science Publishers, London and New-York : 336-350.
- LUIKX F. & FRASER G. (1983). Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing plants in the European Community. Discharge data 1976-1980. Radiological aspects. *Rapport CEE March 1983* : 107 p.
- PALLY M., BAUDIN J.P., FRITSCH A.F., LAMBRECHTS A., MAUREL-KERMARREC A. & FOULQUIER L. (1986). Etude des formes chimiques du Cobalt 60 au cours de diverses expériences de transfert entre l'eau et des organismes aquatiques. *Sciences de l'eau*, 5 : 273-290.
- PANNETIER P. *Vademecum du technicien*. 3 tomes. SCF du Basted. Ed. Massy : 2079 p.
- PENTREATH R.J. (1977). Radionuclides in marine fish. In *Océanographie and marine biologie*. An Annual Review. Edited by BARNES H. Aberdeen University Press, Aberdeen : 355-460.
- PICAT Ph., BOURDEAU F., THIRION J.P., SIGALA M., QUINAULT J.M., ARNAUD M. & CARTIER Y. (1986). Study of the physical form of cobalt in the Loire river. In *Speciation of fission and activation products in the environment*. Elsevier Applied Science Publ. London : 269-286.

- PICAT Ph. (1987). Effluents liquides. In *Impact dans l'environnement des centrales électronucléaires. Programme de recherche EDF/CEA en Radioécologie*. Journée scientifique organisée par l'Association Française de Radioprotection du Sud-Est. Cadarache, 2 Juin 1987 : 22 p.
- POUVREAU B. & AMIARD J.C. (1974). Etude expérimentale de l'accumulation de l'argent-110m chez divers organismes marins. *Rapport CEA-R-4571*. CEN Saclay : 19 p.
- VAN WEERS A.W. and LOUWRIER P.F.W. (1980). Uptake and retention of ^{124}Sb in the common mussel, shrimp and shore crab. In *Impact of radionuclide releases into the marine environment. Proceed. of a symposium, Vienna 6-10 Oct. 1980* : 381-399.

Achévé d'imprimer

par
le C.E.A., Section de Documentation, Cadarache
MARS 1989

Dépôt légal
1^{er} trimestre 1989

La diffusion, à titre d'échange, des rapports et bibliographies du Commissariat à l'Energie Atomique est assurée par le Service de Documentation, C.E.N./Saclay, B.P. n° 2, 91190 GIF SUR YVETTE (FRANCE).

Ces rapports et bibliographies sont également en vente à l'unité auprès de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, 75007 PARIS.

Reports and bibliographies of the Commissariat à l'Energie Atomique are available, on an exchange basis, from the Service de Documentation, C.E.N./Saclay, B.P. n° 2, 91190 Gif sur Yvette (France).

Individual reports and bibliographies are sold by the Documentation Française, 31, quai Voltaire, 75007 PARIS.

Édité par
le Service de Documentation
Centre d'Études Nucléaires de Saclay
Boîte Postale n°2
91190 GIF SUR YVETTE (France)