

ÉTUDES SUR LA RADIOACTIVITÉ DU PLANCTON ET DES SÉDIMENTS CÔTIERS DE LA MER LIGURIENNE

par B. SCHREIBER

INTRODUCTION

Depuis cinq ans environ l'Institut de Zoologie de Parme est engagé, en collaboration avec le laboratoire de radiochimie du C.I.S.E. de Milan, dans un programme de recherches sur le problème de la capture par le plancton marin des radioisotopes dus à la retombée et en particulier sur la possibilité que les Acanthaires, nantis de pouvoir d'accumulation spécifique pour le Sr naturel, puissent représenter des « scavangers biologiques » spécifiques même pour les isotopes radioactifs de cet élément (1).

Puisqu'il nous a été impossible jusqu'à présent de cultiver ces protozoaires planctoniques pour des recherches *in vitro* de « turnover », on a dû recourir à la comparaison en nature du « facteur de concentration » pour le Sr⁹⁰ du plancton *in toto*, ayant été démontré qu'il existe une corrélation positive entre pourcentage des Acanthaires et contenu en Sr naturel dans le plancton (2).

Par conséquent, on a déterminé le Sr⁹⁰ dans le plancton de la Mer Tyrrhénienne qui a toujours un contenu en Acanthaires relativement élevé en comparaison de celui de la partie supérieure de la Mer Adriatique où les Acanthaires sont tout à fait absents.

Facteur de concentration et activité spécifique pour le Sr⁹⁰.

Dans nos précédents travaux (3) nous avons donné des valeurs du facteur de concentration pour le Sr⁹⁰ et du rapport parmi les activités spécifiques, en indiquant qu'elles devaient être considérées provisoires.

On a agi de la sorte, parce qu'une erreur pouvait être possible, une erreur causée par les valeurs du Sr⁹⁰ qui, dans l'eau de mer à notre disposition, n'étaient pas toujours chronologiquement égales à celles qui correspondent au plancton et à la seiche.

On a dû recourir aussi à des analyses d' « échantillons mixtes » de plancton puisqu'il n'a pas été possible d'obtenir, dans une seule pêche planctonique, la quantité de cendre nécessaire pour la détermination radiochimique du Sr⁹⁰.

Actuellement nous pouvons calculer les valeurs du facteur de concentration et du rapport parmi les activités spécifiques puisque nous avons les résultats pour le Sr⁹⁰ dans l'eau de mer relatifs aux périodes de prélèvement de nos échantillons (4) (CNEN/BIO et communication personnelle du Dr A. CIGNA). On a considéré la valeur moyenne de 8,54 mg/l pour le contenu de Sr naturel dans la Mer Ligurienne et la valeur moyenne de 7,44 mg/l pour le contenu de Sr naturel dans la Mer Adriatique; pour le Ca les valeurs moyennes sont respectivement 434 mg/l et 379 mg/l. Le facteur de concentration est obtenu, comme précédemment, par le rapport entre la radioactivité de l'échantillon exprimée en pc Sr⁹⁰/g de cendres ou pc

Plancton	sec	Echantillons	Epoque de récolte	pc Sr ⁹⁰		pc Sr ⁹⁰		pc Sr ⁹⁰		C F cendre	CF sec	Rapports du C F Lig./Adr. Cendr. sec			Activité spécifique des échantillons		Activité spécifique de l'eau		pc Sr ⁹⁰ g Ca U. S. échanti
				g cendres	g sec	g résidu de l'eau						g Sr	g Sr	g Sr	g Sr				
		P-L.0	1.7. 1961	630 × 10 ⁻³	106 × 10 ⁻³	6,85 × 10 ⁻³	92,00	15,50							30,73	30,4	7,71		
		P-L.1	1.2. 1962	710 × 10 ⁻³	237 × 10 ⁻³	11,70 × 10 ⁻³	60,50	20,20	P-L.1						114,52	52,3	8,10		
		P-A.1	1. 2.1962	240 × 10 ⁻³	051 × 10 ⁻³	17,40 × 10 ⁻³	14,00	2,94	P-A.1	4,3	6,9				452,83	82,0	2,71		
		P-L.2	15. 8.1962	2,600 × 10 ⁻³	333 × 10 ⁻³	15,20 × 10 ⁻³	171,0	21,70	P-L.2						96,60	67,6	25,69		
		P-A.2	1. 9.1962	330 × 10 ⁻³	063 × 10 ⁻³	23,40 × 10 ⁻³	14,10	2,70	P-A.2	12,2	8,0				103,12	110,0	1,85		
		P-A.2bis	15. 8.1962	530 × 10 ⁻³	247 × 10 ⁻³	23,40 × 10 ⁻³	22,60	10,50							230,43	110,0	2,55		
		P-L.3	15. 6.1963	3,230 × 10 ⁻³	444 × 10 ⁻³	12,40 × 10 ⁻³	260,0	35,70	P-L.3						56,57	55,0	112,54		
		P-A.3	15. 7.1963	1,100 × 10 ⁻³	534 × 10 ⁻³	31,00 × 10 ⁻³	35,60	17,20	P-A.3	7,3	2,1				1375,00	147,0	7,34		
		P-BN.1	16.10.1963	7,100 × 10 ⁻³	836 × 10 ⁻³	11,00 × 10 ⁻³	645,0	76,00	P-BN.1						236,66	49,0	27,84		
									P-A.3	21	4,4								
		S-L.1	15. 2.1962	106 × 10 ⁻³	057 × 10 ⁻³	9,30 × 10 ⁻³	11,4	6,12	S-L.1						18,25	41,3	0,15		
		S-A.1	1. 1.1962	197 × 10 ⁻³	106 × 10 ⁻³	10,80 × 10 ⁻³	18,2	9,80	S-A.1	0,625	0,625				33,20	51,0	0,28		
		S-A.2	1. 5.1962	200 × 10 ⁻³	110 × 10 ⁻³	15,00 × 10 ⁻³	13,3	7,33	S-L.1						34,45	71,0	0,29		
		S-L.2	15.12.1963	340 × 10 ⁻³	174 × 10 ⁻³	13,80 × 10 ⁻³	24,6	12,6	S-A.2						61,80	62,3	0,53		

TABLEAU I

Sr^{90}/g de sec et celle du milieu exprimée en $pc\ Sr^{90}/g$ de résidu d'eau de mer. Le résidu qui dérive d'un litre d'eau de la Mer Ligurienne est à peu près de 38 g, celui de la Mer Adriatique est d'environ 35 g, si l'on considère que la salinité est respectivement de 37 ‰ et 34 ‰ dans les deux mers.

Le tableau 1 résume les résultats obtenus dans nos recherches pour le Sr^{90} corrélatifs avec ceux donnés par le CNEN pour l'eau de mer.

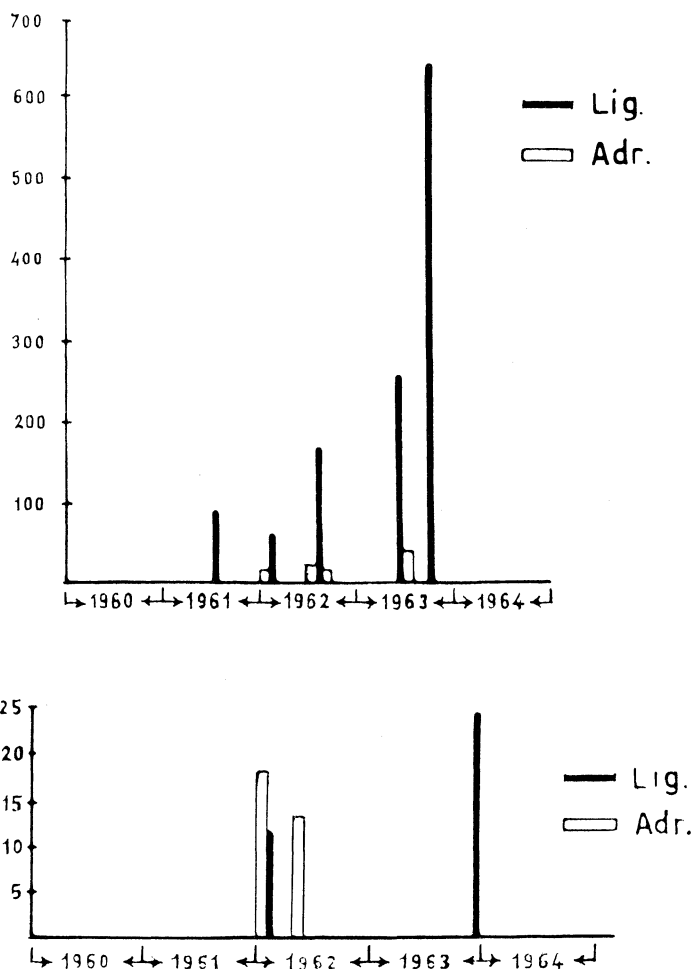


FIG. 1 et 2. — *Facteur de concentration pour le Sr^{90} , dans le plancton (en haut) et l'os de seiche (en bas).*

La comparaison entre les valeurs de concentration rapportée aux cendres du plancton ligurien et du plancton adriatique, représentée graphiquement dans la figure 1, semble confirmer l'hypothèse initiale puisque le facteur de concentration du plancton tyrrhénien est en moyenne à peu près 11 ou 12 fois à celui du plancton adriatique.

Comme terme de comparaison pour la validité de l'hypothèse on a étudié le facteur de concentration pour le Sr^{90} de l'os de seiche qui est constamment présent dans les deux mers. Du graphique de la figure 2 on peut voir que ce facteur de concentration est presque égal dans les deux cas, ce qui confirme la supposition que dans le plancton tyrrhénien il devrait exister un composant zoologique capable de concentrer les isotopes radioactifs du Sr; évidemment les Acanthaires peuvent être ce composant.

La radioactivité du plancton et de l'eau de mer prélevés pendant la première croisière océanographique du M/N « Bannock ».

Les conclusions de ces recherches sont confirmées par les résultats de l'analyse des échantillons de plancton et d'eau de mer. Grâce au CNR l'Institut de Zoologie et d'Anatomie Comparée de l'Université de Parme a pu prendre part à la première croisière océanographique du M/N « Bannock » et a réalisé par conséquent la récolte simultanée de 90 litres d'eau de mer et d'une quantité de plancton apte à donner 38,23 g de résidu sec égal à 4,5 g de cendres, cette quantité étant suffisante pour une seule détermination analytique.

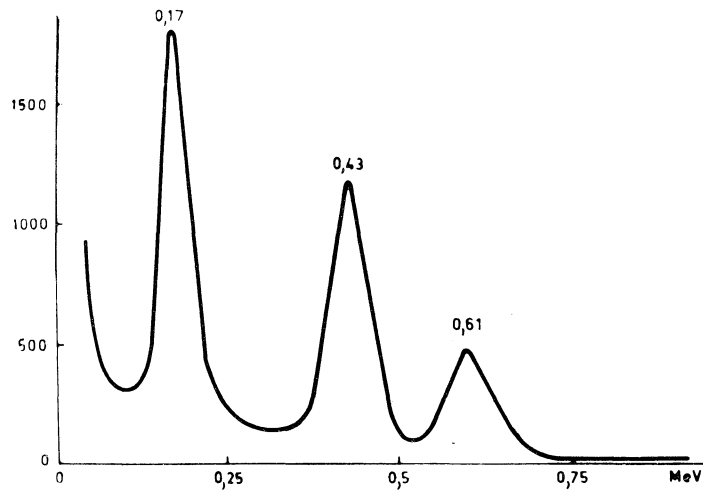


FIG. 3. — Spectre gamma de l'Sb¹²⁵ dans le plancton (P-BN. 1).

La croisière a eu lieu pendant les mois de septembre et octobre 1963 dans la Mer Tyrrhénienne. Comme pour les échantillons de plancton que nous avons étudiés précédemment (5, 6), dans celui-ci aussi on a mesuré l'activité bêta totale. Sa valeur est résultée, pour l'échantillon de 100 mg de cendre, de 160 cpm à la date moyenne de la pêche et elle nous a encouragé à la recherche des nuclides qui avec le Sr⁹⁰ déterminent une si haute radioactivité. Pour la détermination des radioéléments présents dans le plancton et dans l'eau de mer, on a mis au point deux procédés radiochimiques convenables (7, 8).

Dans le plancton le Sr⁹⁰ a été déterminé dans la fraction du Sr naturel, en séparant ce dernier du Ca par des précipitations nitriques, en le purifiant des terres rares et du radium.

Le Zr⁹⁵-Nb⁹⁵ et le Sb¹²⁵ ont été déterminés dans le résidu silicique isolé de l'échantillon pour rendre plus faciles les séparations nitriques. Après l'élimination de la silice le résidu contenant les susdits nuclides a été soumis à un double traitement avec de l'acide tartrique, d'abord dans un milieu chlorhydrique, ensuite dans un milieu ammoniacal duquel on a dérivé un précipité, qui à la spectrométrie gamma a révélé la présence de Zr⁹⁵-Nb⁹⁵ et une phase liquide contenant la plupart du Sb¹²⁵ (65-70 %). La quantité restante de Sb¹²⁵ a été trouvée partiellement dans le surnageant obtenu après la précipitation des hydrates et des carbonates destinés à la séparation nitrique. Les trois solutions contenant le Sb¹²⁵ ont été unies et traitées convenablement pour la précipitation du Sb comme sulfure.

Ce précipité soumis à la spectrométrie gamma a montré les énergies caractéristiques du Sb¹²⁵ (fig. 3). Les solutions nitriques obtenues du procédé de séparation Ca-Sr ont été concentrées et par conséquent manipulées pour la précipitation des terres rares comme des oxalates.

Ces oxalates analysés à la spectrométrie gamma ont montré clairement les pointes caractéristiques de l'énergie du Ce¹⁴⁴.

Successivement, on a procédé à la séparation des terres rares, en les fixant d'abord sur un lit de cellulose traité avec de l'acide diéthylsilphosphorique et en les éluant successivement aux solutions chlorhydriques à différente normalité. Les différentes fractions obtenues et soumises à des mesures bêta et gamma ont prouvé qu'il y a du Ce^{144} - Pr^{144} , Eu^{155} et du Pm^{147} . Le spectre gamma de l' Eu^{155} est représenté graphiquement dans la figure 4, l'activité bêta du Pm^{147} est indiquée dans le graphique de la figure 5, où l'énergie bêta de ce nuclide est confirmée avec la technique des absorbeurs.

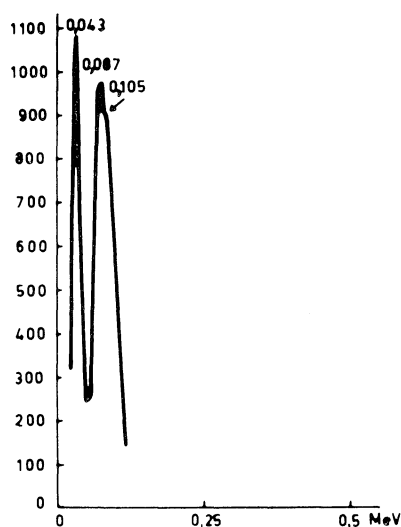


FIG. 4. — Spectre gamma de l' Eu^{155} dans le plancton (P-BN.1).

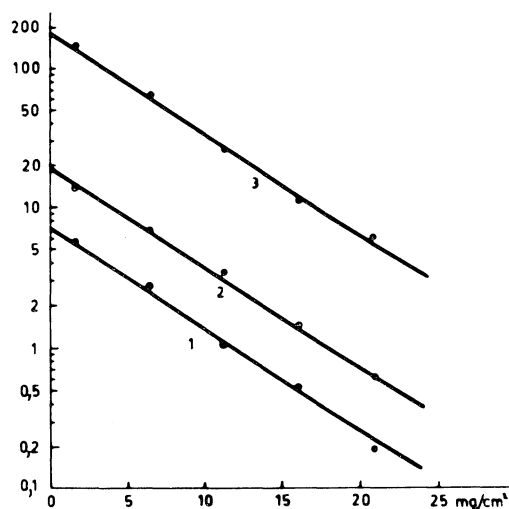


FIG. 5. — Pm^{147} confirmé avec la technique des absorbeurs.

Le filtrat provenant de la précipitation oxalique des terres rares, a été transformé en solution nitrique de laquelle le Mn avec beaucoup de NaOH a été précipité.

Le précipité contenant Mn^{54} a été calciné et analysé par spectrométrie gamma. Le spectre obtenu est celui de la figure 6.

La fraction de $BaCrO_4$ obtenue de la purification du Sr^{90} , du Ra^{226} a été traitée convenablement jusqu'à obtenir le Ba et le Ra sous la forme de sulfates. La mesure de spectrométrie alfa par chambre à ionisation a donné le spectre du Ra^{226} représenté dans la figure 7.

Dans cette communication nous ne voulons pas représenter les données quantitatives des nuclides que nous avons déterminés puisque nous les avons déjà décrits dans des travaux précédents (7, 8, 9, 10).

Quelques-uns des susdits radioéléments tels que le Sr^{90} - Y^{90} , Ce^{144} - Pr^{144} , Eu^{155} , Pm^{147} ont été déterminés, soit dans l'échantillon de plancton, soit dans l'échantillon d'eau de mer prélevée pendant la première croisière du « Bannock ».

Des résultats semblables aux nôtres ont été obtenus même par le Dr BOWEN de la Woods Hole Oceanographic Institution, qui nous a communiqué ses rapports relatifs au Ce^{144} , Pm^{147} , Eu^{155} dans l'eau de mer soumise à une analyse radiochimique très soignée.

Autoradiographie comme moyen de révélation de la radioactivité du plancton et des Acanthaires.

De la comparaison des données quantitatives de la radioactivité dans le plancton et dans l'eau de mer on peut sans doute conclure en confirmant que le plancton explique une relevante capacité de remuement des radioéléments présents dans le milieu de mer à travers différents

mécanismes qui peuvent être d'assimilation pour les nuclides en forme ionienne du Sr de la part des Acanthaires et d'adsorption pour les radioéléments en forme particulée de la part soit des Acanthaires soit d'autres planctontes.

Des recherches autoradiographiques faites sur des Acanthaires isolés du plancton ont prouvé, dans quelques cas, des réactions fortement positives avec d'évidentes traces bêta probablement dues aux radioéléments susdits. La décroissance de cette réaction dans les mêmes échantillons après un an et demi confirme que la plupart de la radioactivité, qui a déterminé le noircissement dans les autoradiographies, est due à des radioéléments à vie brève. Des recherches sont en cours avec des émulsions particulièrement sensibles aux énergies bêta du Sr^{90} , pour individuer l'éventuelle accumulation de cet élément dans les spicules des Acanthaires.

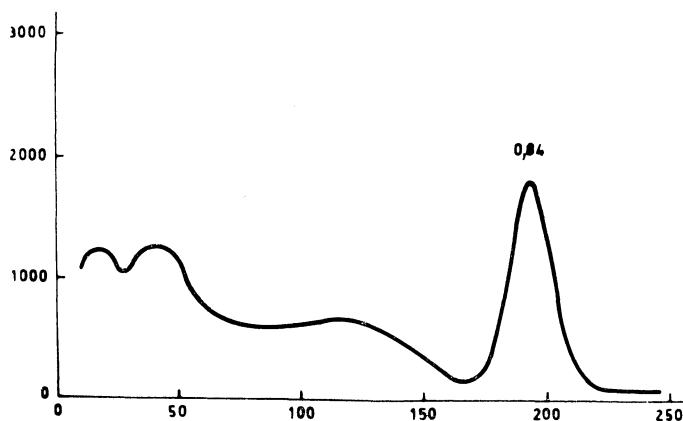


FIG. 6. — Spectre gamma du Mn^{54} dans le plancton (P-BN.1).

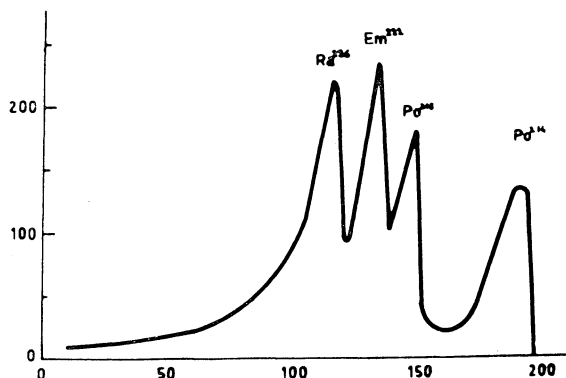


FIG. 7. — Spectre alfa du Ra^{226} dans le plancton (P-BN.1).

La radioactivité artificielle et naturelle dans les sédiments de mer.

Une seconde partie des recherches concerne la radioactivité des sédiments côtiers obtenus par le carottier Pflieger à gravité de un mètre de longueur sur le plateau continental vis-à-vis des « Cinque Terre » (La Spezia) et à la profondeur variable de 50, 100, 200 et 300 m.

On a mesuré l'activité bêta totale des sections successives de 2 cm de chaque carotte, démontrant le fait intéressant que, tandis que les premières fractions jusqu'à 4 cm ont des maximums d'activité correspondant à 15-31 cpm/g sec, les sections de la colonne successive présentent des valeurs presque constantes et correspondant environ à 9-10 cpm/g sec (12). La

figure 8 montre ces cours pour la carotte n° 11 et la valeur du K^{40} obtenu par la détermination du K total naturel, présent dans chaque section de cette carotte.

En outre on a remarqué que les valeurs les plus grandes des premières couches diminuent avec l'augmentation du fond et que, tandis que les valeurs de la radioactivité de ces fractions décroissent en fonction du temps en indiquant la présence des radioéléments de la retombée,

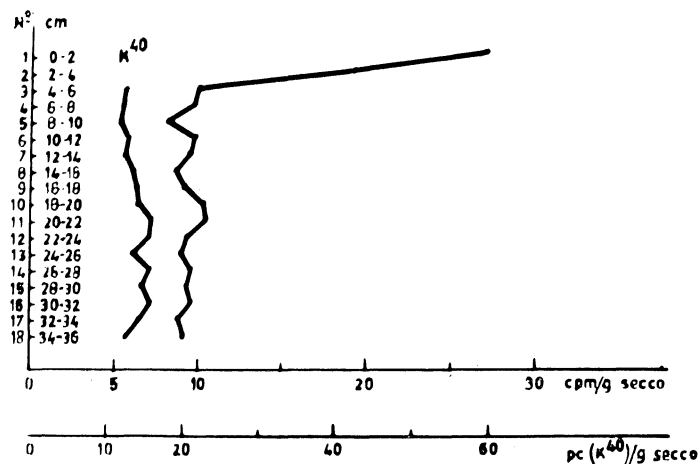


FIG. 8. — Radioactivité bêta totale de la carotte n° 11 et activité bêta du K^{40} .

celles qui correspondent aux successives fractions de la colonne restent absolument constantes et par conséquent on devrait les attribuer à des radioéléments naturels de la mer (K^{40} , U, Th, Ra, etc.).

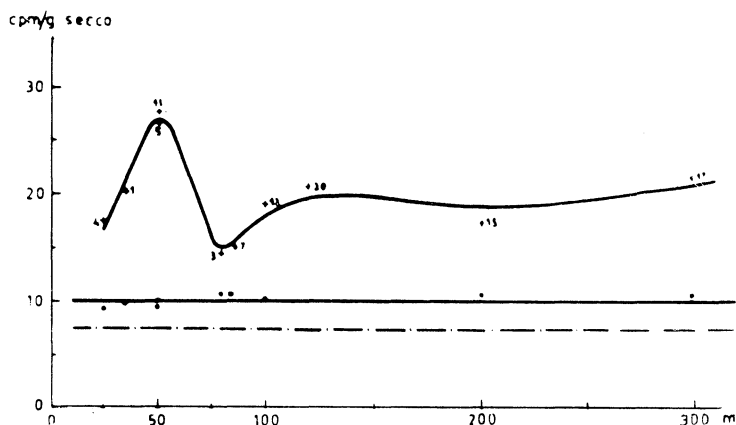


FIG. 9. — a) Ligne continue supérieure : variation des maximums bêta superficiels en fonction de la profondeur ;
 b) ligne continue inférieure : activité moyenne des niveaux inférieurs ;
 c) ligne pointillée : activité bêta du K^{40} .

La figure 9 montre la variation des maximums superficiels en fonction de la profondeur du fond (ligne continue supérieure).

La variation rencontrée dans les plus grandes valeurs superficielles peut être attribuée à des causes différentes. Une augmentation d'activité avec un maximum de près de 50 m de profondeur, est probablement due au fait que la masse d'eau et la biomasse des couches supé-

rieures peuvent retenir une très petite partie de la retombée dans cette zone et par conséquent la quantité et la vélocité de dépôt de la retombée sur le fond sont peu variables à l'égard de ce qu'on aurait s'il n'y avait pas d'eau et de biomasse.

Une décroissance avec des oscillations autour des valeurs inférieures au maximum d'activité des 50 m indique combien l'eau et la biomasse surimposée peuvent interférer dans la quantité et la vélocité de rechute sur le fond de la mer. La figure 10 représente le cours de l'activité bêta totale dans les premières trois sections de la carotte n° 5 en fonction du temps.

Quelques mesures radiométriques préliminaires ont prouvé la présence de quelques radioéléments naturels et artificiels du fall-out.

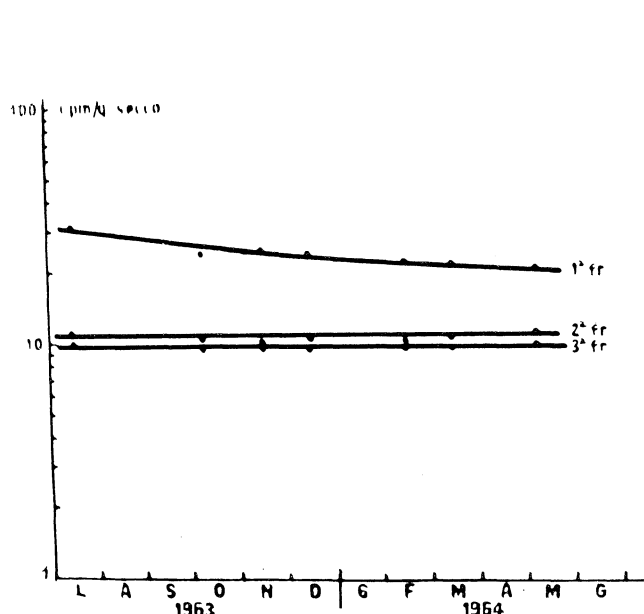


FIG. 10. — Décroissance de l'activité bêta totale dans les trois premières sections de la carotte n° 5 en fonction du temps.

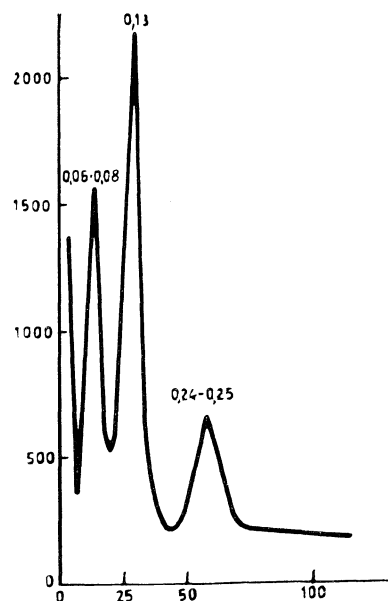


FIG. 11. — Spectre gamma du précipité, des terres rares et Th.

La recherche des nuclides de la retombée a été faite sur un échantillon obtenu par le mélange de quelques fractions superficielles des carottages en question et posée pour la détermination quantitative des radioéléments déjà individuéés dans le plancton.

On a ajouté aux échantillons à l'examen les entraîneurs convenables et on a procédé à des séparations radiochimiques soignées (13).

Après l'élimination de la silice par acide fluorhydrique et acide nitrique, le résidu a été d'abord traité avec HClO_4 jusqu'à la sécheresse pour éloigner le HF excessif, ensuite par une solution nitrique en présence de H_2O_2 jusqu'à ébullition pour obtenir un précipité contenant Zr-Nb et Sb. Après un traitement pour la séparation des différents éléments, on n'a obtenu l'identification d'aucun des nuclides que l'on supposait être présents (Zr^{95} - Nb^{95} , Sb^{95}).

Le filtrat correspondant au susdit précipité a été soumis à un autre traitement qui avait le but de porter à la détermination des terres rares, du Mn et de l'éventuel Sb échappé à la précédente précipitation; ni le Mn^{54} ni le Sb^{125} n'ont été trouvés.

Le groupe des terres rares et le Thorium ont été isolés moyennant précipitation avec de l'acide oxalique à Ph 1,5; les oxalates obtenus, réchauffés à 400°C et dissous dans un milieu nitrique en présence de H_2O_2 ont été purifiés par le Ca, Sr, Ba.

Un spectre gamma exécuté sur le précipité des terres rares et Thorium (figure 11) montre les énergies caractéristiques dues au Ce^{144} et à quelques descendants du Th^{232} .

Les terres rares ont été séparées en les fixant sur une colonne de cellulose traitée avec acide diéthyl-phosphorique (HDEHP) et en les éluant au HCl à différente normalité d'une manière analogue à ce qu'on avait fait pour le plancton et pour l'eau de mer.

Des trois fractions obtenues, mesurées bêta et gamma, celles du Ce et du Nd-Pm¹⁴⁷ sont résultées radioactives.

Le Th²³² resté sur la colonne a été confirmé par la spectrométrie alfa exécutée sur le résidu provenant de la destruction totale du lit de cellulose. Les radioéléments déterminés, Ce¹⁴⁴-Pr¹⁴⁴ et Pm¹⁴⁷ portent une remarquable contribution à l'activité bêta des couches superficielles des sédiments.

Actuellement on est en train d'exécuter des recherches pour la détermination du contenu de Sr⁹⁰, Ra²²⁶, U et Th dans toutes les fractions de ces sédiments.

Istituto di Zoologia e Anatomia comparata. Università di Parma.

Ces recherches ont été faites avec la collaboration du Prof. E. CERRAI et du Dr C. TRIULZI (Laboratoire de Radiochimie du CISE-Milan) et du Dr L. TASSI PELATI et du Dr A. FANO SCHREIBER, pour ce qui concerne la Radiochimie et Chimie analytique.

Le Dr Elsa BOTTAZZI MASSERA et le Dr Anna VANNUCCI ont collaboré pour ce qui concerne la Zoologie systématique et l'Ecologie des Acanthaires.

Les recherches faites dans l'Institut de Zoologie de Parma ont été subventionnées avec des fonds de la part de l'I.A.E.A. (Res. Contract n° 62/3/US) et avec des contributions du CNEN et du CNR.

Nous remercions vivement le laboratoire du CNEN de Fiascherino et le « Comando Militare Marittimo » de La Spezia pour l'appui donné pour la recherche en mer.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) SCHREIBER (B.), 1960. — Ecology of Acantharia and Sr circulation in the sea. — Proc. Conf. — Disposal of radioactive Wastes-Monaco 16-21 novembre 1959, IAEA, **2**: 25.
- (2) SCHREIBER (B.), BOTTAZZI-MASSERA (E.), FANO-SCHREIBER (A.), GUERRA (F.) et PELATI (L.), 1962. — Ricerche sulla presenza dello Sr nel plancton marino in rapporto alla ecologia degli Acanthari. — Contributo al V Colloquio int. sui problemi ecologici delle zone litorali del Mediterraneo. Napoli 17-23 luglio 1961, in *Pubbl. Staz. Zool. Napoli*, **32**, suppl. 400.
- (3) SCHREIBER (B.), 1963. — Acantharia as « scavengers » for Sr and their role in the sedimentation of radioactive debris. — Contributo al Simposio « Nuclear detonations and marine radioactivity ». Kjeller (Oslo) 16-20 septembre 1963.
- (4) CNEN/BIO 12/61, 06/62, 26/62, 03/63.
- (5) CERRAI (E.), PELATI (L.), SCHREIBER (B.) et TRIULZI (C.), 1962. — Misure di radioattività di campioni di zooplankton del Mare Adriatico e del Mar Ligure pescati fra il maggio 1961 ed il gennaio 1962. — *Energia Nucleare*, Milano **9**: 173.
- (6) CERRAI (E.), PELATI (L.), SCHREIBER (B.) et TRIULZI (C.), 1963. — Gross beta radioactivity of plankton samples collected in the Adriatic and Ligurian seas from May 1961 to november 1962. — *Energia Nucleare*, Milano, **10**: 315.
- (7) SCHREIBER (B.), CERRAI (E.), TRIULZI (C.) et TASSI PELATI (L.), 1964. — Radioattività beta totale, contenuto di Sr⁹⁰ e di altri radionuclidi nel plancton pescato nel Mar Tirreno durante la 1^a Campagna oceanografica della M/N « Bannock ». — *Ist. Lomb. Rend. Sc., B*, **98**: 143-166.

- (8) CERRAI (E.), SCHREIBER (B.), TRIULZI (C.) et TASSI-PELATI (L.), 1964. — Ra^{226} , Pm^{147} Mn^{54} content in a plankton sample of the Tyrrhenian Sea. — *Ist. Lomb. Rend. Sc.*, B, **98**: 197-204.
 - (9) CERRAI (E.), PELATI (L.), SCHREIBER (B.) et TRIULZI (C.), 1963. — Some determinations of Sr 90 in cuttle-bone (sepia-bone). — *Energia Nucleare*, Milano, **10**: 45.
 - (10) CERRAI (E.), PELATI (L.) et TRIULZI (C.), 1963. — Radiochemical studies for activity determinations in marine plankton. — *CISE Report* n° 95,
 - (11) SCHREIBER (B.) et ORTALLI (I.), 1963. — Animali estrattori di Sr nel plancton marino : gli Acanthari. — *Suppl. Nuovo Cimento*, 1-6.
 - (12) SCHREIBER (B.), PELATI (L.), CERRAI (E.), et TRIULZI (C.), 1964. — Gross beta radioactivity of littoral sediments of the Ligurian Sea. — *Energia Nucleare*, Milano, **11**: 556.
 - (13) CERRAI (E.), SCHREIBER (B.), TRIULZI (C.) et TASSI-PELATI (L.), 1964. — Contribution of Ce^{144} — Pr^{144} and Pm^{147} to the radioactivity of upper layers of coastal sediments of the Ligurian Sea. — *Ist. Lomb. Rend. Sc.*, B, **98**: 184-196.
-