

Accumulation et rétention de ^{237}Np chez deux invertébrés marins

Jean-Claude Guary et Scott Fowler

Laboratoire international de radioactivité marine
Musée océanographique
Principauté de Monaco

Résumé

Le ^{237}Np a été utilisé comme traceur pour déterminer le flux de cet élément chez les crevettes et les moules. L'accumulation du ^{237}Np est lente, le facteur de concentration dans les deux espèces est d'environ 15 à 20. L'élimination du ^{237}Np chez la crevette est très rapide, la perte étant fortement influencée par la mue. La différence observée dans l'élimination de ce même isotope chez les moules des expériences menées *in situ* et au laboratoire pourrait être due à la croissance rapide des animaux maintenus en mer.

Summary

Neptunium-237 kinetics were studied in marine shrimp and mussels using a thick source alpha counting technique. Uptake of ^{237}Np from water was slow reaching concentration factors of only 15 to 20 in both species; elimination of the isotope was rapid being strongly influenced by both shrimp molting and growth of mussels.

Le neptunium-237, émetteur alpha à demi-vie extrêmement longue ($2,2 \times 10^6$ ans), détecté dans le milieu aquatique, provient essentiellement d'explosions nucléaires atmosphériques et d'effluents d'usines de retraitement des combustibles nucléaires irradiés, mais aussi de la transformation *in situ* de l'américium-241. Cependant, bien que sa présence dans le milieu marin ait été établie, on ne connaît presque rien de son rôle bio-géochimique ou de son comportement vis-à-vis des organismes marins.

L'accumulation directe de ^{237}Np à partir de l'eau de mer a été étudiée durant 92 jours, chez la crevette benthique *Lysmata seticaudata* et la moule *Mytilus galloprovincialis*. Deux groupes comprenant chacun plusieurs dizaines de crevettes et de moules ont été placés séparément dans des aquariums contenant de l'eau de mer contaminée avec du ^{237}Np , à 13 °C et 23 °C, de façon à évaluer l'effet de la température sur l'accumulation de ce radioélément.

Immédiatement après cette période d'accumulation, les individus restant ont été transférés dans de l'eau de mer non contaminée afin de mesurer le taux d'élimination du ^{237}Np sous différentes conditions. Deux groupes de crevettes et de moules sont maintenus à 13 °C et à 23 °C ; un troisième groupe de crevettes est placé dans un aquarium recevant de l'eau de mer constamment renouvelée, à une température variant de 16°8 à 21°2 °C durant l'expérience ; le troisième groupe de moules est déposé en mer, près de la côte. La radioactivité du ^{237}Np des échantillons est mesurée suivant la technique de détection des particules alpha en couche épaisse, utilisée précédemment par Shannon (1970) chez des organismes marins.

L'accumulation du ^{237}Np chez *Lysmata seticaudata* est lente ; le facteur de concentration après cette période de 92 jours est d'environ 15 à 20. La température ne semble pas influencer ce processus. Les mues ont été analysées régulièrement et d'assez hautes teneurs en ^{237}Np y ont été mesurées par rapport aux concentrations en neptunium détectées chez la crevette. Il est évident que le ^{237}Np s'accumule rapidement sur la surface externe de l'exosquelette. De même, la température ne semble avoir aucune influence sur l'accumulation du ^{237}Np chez *M. galloprovincialis*. Les plus hauts facteurs de concentration se rencontrent dans les coquilles. Après cette période de 92 jours, les facteurs de concentration du ^{237}Np dans la moule entière (15 à 20) sont légèrement inférieurs à ceux rapportés pour le plutonium chez la même espèce par Fowler *et al.* (1975).

Chez la crevette *L. seticaudata*, l'élimination du ^{237}Np présente deux phases. La première, très rapide (T_b 1/2 = 4 jours), entraîne une forte diminution de la radioactivité des animaux ; la deuxième, très lente (T_b 1/2 = 252 jours) ne concerne qu'une infime fraction du neptunium fixé (3 % de la radioactivité initiale). La perte totale du radionucléide est fortement influencée par la mue, processus qui semble jouer un rôle très important dans le recyclage bio-géochimique du ^{237}Np , comme dans celui du

plutonium (Fowler *et al.*, 1975). Enfin, la température ne semble pas influencer de façon significative la perte de ^{237}Np chez *L. seticaudata*. Chez *M. galloprovincialis*, le ^{237}Np est éliminé à partir de la chair à des taux comparables pour les deux régimes de température, mais les coquilles des individus soumis à une température de 13 °C semblent perdre le radioélément plus rapidement que celles des animaux placés dans une eau à 23 °C. Les taux d'élimination du ^{237}Np à partir des deux mêmes tissus des moules replacées dans leur environnement naturel présentent une différence significative : les demi-vies biologiques calculées pour la coquille et la chair sont respectivement de 74 et 331 jours. De plus, chez ces mêmes individus, la perte totale est plus rapide que chez les individus placés à 23 °C. Chez les moules *in situ* l'élimination active de ^{237}Np (dont la demi-vie est de 81 jours), beaucoup plus rapide que celle du plutonium (Fowler *et al.*, 1975), pourrait être le résultat de la croissance rapide de ces individus observée au cours de cette expérience.

Références bibliographiques

- Shannon L.V., 1970. Studies of alpha-radioactivity in the marine environment
PhD Thesis, 255 pp, University of Cape Town.
- Fowler S.W., Heyraud M. et Beasley T.M., 1975. Experimental studies on
plutonium kinetics in marine biota. In: Impacts of Nuclear Releases into
the Aquatic Environment, STI/PUB/406, p. 157-177. IAEA, Vienna.

3. Guary J.C., Fowler S.W. - Accumulation et rétention de ^{237}Np chez deux invertébrés marins.

Discussion

Guegueniat P. (France) : A-t-on une idée de la chimie du Neptunium dans l'eau de mer ?

Guary J.C. : Il n'existe pas, actuellement, à ma connaissance, d'études exhaustives sur la chimie du Neptunium en eau de mer.

Mangini A. (Germany) : Are there any profiles for ^{237}Np in Ocean water ? Could you give me, for example, a value for surface water in dpm/liter ?

Guary J.C. : No, there are no studies about ^{237}Np profiles in Ocean water. But Noshkin et al. (1971) have made some ^{237}Np measurements in the waters of Bikini and Eniwetok atolls; these measurements indicate that the ^{237}Np concentration in water is as low as 2% or less of the $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ present (~ 0.002 dpm/100 l).

Rapaire J.L. (Monaco Principality) : Quelle est l'influence de l'état de surface de la source, autrement dit du rapport épaisseur de la zone perturbée de surface/parcours des alpha dans la source, sur la reproductibilité des mesures exprimée en % ?

Guary J.C. : J'ai volontairement été bref en ce qui concerne la description de la technique utilisée. Tous les détails concernant cette méthode sont exposés dans la thèse de Shannon (1970) (travail donné en référence dans notre texte).

Fowler S.W. : I would like to comment on experimental designs used to measure biological half-lives. Our Pu studies carried out in our flowing sea water aquariums have indicated a $Tb_{1/2}$ for mussels of about 800 days. These animals, although apparently healthy, did not grow much during the 6 month study. A similar study carried out in situ this year gave a value of about 80 days over a similar period of time. The mussels in this study grew significantly. The conclusions we have drawn from these findings are that, 1) experiments of this type should be carried out in situ whenever possible regardless of pollutant, and 2) caution should be used when interpreting laboratory derived biological half-lives for certain organisms (comment).

Lucu Č. (Yugoslavia) : I agree that radioactivity loss experiments should be done, if it's possible, in environmental conditions; data on ^{233}Pa loss from mussels and green crabs performed in natural conditions already exist (Mar.Biol.1969) (comment).

Livingston H.D. (USA) : Do you have any comments on the possible role of carbonate complexing in the uptake and retention/elimination of Np in mussels or shrimps - in that it is possible to expect that Np chemistry in seawater might be closer to U (known to be in uniform concentrations as carbonate complex) than to Pu ?

Fowler S.W. : This may be an important factor in determining the accumulation and loss kinetics of ^{237}Np in marine organisms. However, if it were behaving as uranium carbonate complexes, it would not have expected to see so high a concentration factor as we observed in our experiments. Published information points to uranium concentration factors in the range of 1 to 5, which are considerably less than those we measured for ^{237}Np .

