

# ETUDE DE QUELQUES ASPECTS DU COMPORTEMENT DE L'ANTIMOINE 125 ET DE SON ISOTOPE STABLE DANS LE MILIEU MARIN

P. GUEGUENIAT\*, A. GRAUBY\*\*, R. GANDON\*, Y. BARON\*\*\*

\* Laboratoire de Radioécologie Marine, La Hague

\*\* Laboratoire de Radioécologie Continentale, Cadarache

\*\*\* Groupe d'Etudes Atomiques, Marine Nationale, Cherbourg.

-----  
Abstract : Discrepancies are observed between the in situ behaviour of stable Sb and <sup>125</sup>Sb in marine environment and for <sup>125</sup>Sb between experimental and in situ data. Any slow speed reactions might be explain this phenomenon.  
-----

L'antimoine 125 représente un constituant important de la fraction radioactive des effluents rejetés en mer par les usines de traitement de combustibles irradiés. On pense généralement que l'introduction de ce radionucléide dans le milieu marin ne pose pas de problèmes sérieux du point de vue sanitaire ce qui explique le peu de travaux consacrés à son étude. Les données que nous avons recueillies en Manche, dans une zone soumise à l'influence des rejets de l'usine de traitement de La Hague, montrent qu'il convient de nuancer cette opinion et que le <sup>125</sup>Sb mérite à plus d'un titre d'attirer l'attention des radioécologistes.

a) Les teneurs de l'antimoine dans la zone littorale proche de l'émissaire de rejets ont été, pendant une période d'observation allant de juillet 1974 à juillet 1976, généralement comprises entre 1 et 3 pCi/litre hormis octobre 1975 où elles ont atteint 5 pCi/litre. Comparativement aux faibles activités des eaux littorales de la baie de Seine (0,05-0,1 pCi/l) on observe une légère reconcentration du <sup>125</sup>Sb dans les eaux littorales de la baie du Mont Saint Michel et la région Cap Fréhel-Saint Malo (0,15-0,5 pCi/litre) ; ces dernières valeurs sont nettement supérieures à celles qu'on peut estimer correspondre au "bruit de fond" de l'eau de mer estimé dans la région de Coffs à 0,01-0,02 pCi/litre. Il semble qu'une étude consacrée à la dispersion du <sup>125</sup>Sb à partir d'un émissaire quelconque pourrait aider à suivre le déplacement de masses d'eau en raison de la "mobilité" de ce radionucléide.

b) Les facteurs de concentration atteignent ou dépassent 1 000 pour les fractions fines de sédiments, le phyto-plancton et dans le cas particulier d'une ascidie Dendrodoa grassularia. Il y aurait lieu de poursuivre ces recherches en ce qui concerne les autres constituants du milieu appelés à fixer ce radionucléide à des taux équivalents.

c) Pour les algues étudiées les facteurs de concentration sont faibles (de l'ordre de 100) ; on note cependant des valeurs ponctuelles anormalement élevées (5-10 fois supérieures)

(1)

d) Les facteurs de concentration établis expérimentalement en laboratoire sont en désaccord avec nos propres valeurs établies in situ. Ainsi pour l'ascidie Dendrodoa grassularia la valeur expérimentale 5-6 est très en dessous de la valeur in situ 300-1000.

e) Des fluctuations des teneurs en  $^{125}\text{Sb}$  de l'eau environnante sont très amorties au niveau d'algues et surtout de sédiments.

f) Dans les sédiments du Nord-Cotentin, directement soumis à l'influence des rejets de l'usine de La Hague, les teneurs moyennes les plus élevées observées ont été pour 1976 de 370-390 pCi/kg sec. Des valeurs atteignant un ordre de grandeur équivalent relevées à Granville (250 pCi/kg) et à Tréguier, Côtes du Nord (180 pCi/kg) montrent qu'il existe une certaine discontinuité dans la distribution du  $^{125}\text{Sb}$  de sédiments prélevés à des distances croissantes de l'émissaire de La Hague.

g) Du point de vue fondamental l'antimoine offre un intérêt particulier en ce qui concerne la comparaison du comportement des isotopes stables et radioactifs. Les premières informations dont nous disposons au sujet de l'isotope stable montrent une teneur de 0,1-0,4  $\mu\text{g/litre}$  dans les eaux du large de la Manche et de 0,1  $\mu\text{g/litre}$  dans les mêmes eaux côtières. En outre le facteur de concentration de l'antimoine stable (10 000) sur la fraction fine de sédiments semble supérieur à celui du  $^{125}\text{Sb}$  (1 000-2 000) (2)

h) Les facteurs de concentration de l'antimoine stable in situ plus élevés que ceux du  $^{125}\text{Sb}$  in situ, eux-mêmes supérieurs à ceux relatifs aux études expérimentales basées sur l'utilisation de  $^{125}\text{Sb}$  peuvent faire croire à l'existence de formes physico-chimiques différentes pour les diverses sources d'antimoine considérées. Une autre hypothèse peut tout aussi bien être envisagée : elle consiste à admettre que les vitesses de réaction de l'antimoine sont très lentes. On expliquerait ainsi :

- les faiblesses des facteurs de concentration expérimentaux en raison des courtes périodes d'observation
- la discrimination apparente des sédiments entre isotope stable et isotope radioactif : l'antimoine stable présent à l'échelle géologique dans l'eau de mer serait naturellement plus fixé que le  $^{125}\text{Sb}$  récemment introduit
- l'inertie des algues et sédiments à l'égard de fluctuations du  $^{125}\text{Sb}$  dans les eaux environnantes.

#### REFERENCES :

- (1) AMIARD, J.C. 1973. Etude expérimentale de l'accumulation de l'antimoine  $^{125}\text{Sb}$  par divers groupes d'organismes marins. Rapport CEA-R-4530.
- (2) GUEGUENIAT, P., GANDON, R., HEMON, G., PHILIPPOT, J.C.I. Méthodes de mesure d'éléments à l'état de traces dans l'eau de mer par activation neutronique et absorption atomique - cas particulier des isotopes stables de produits de fission. Colloque International sur l'étude de techniques nucléaires pour la détection, la mesure et la surveillance des polluants de l'environnement. Vienne, 15-19 mars 1976.

- 11+15. Guegueniat P., Grauby A., Gandon R., Baron Y. - Etude de quelques aspects du comportement de l'Antimoine 125 et de son isotope stable dans le milieu marin.

### Discussion

Lapique G. (France) : Il est intéressant de remarquer la migration de certains traceurs comme Sb à contre courant du mouvement général de la Manche vers la Mer du Nord. Cela semble indiquer, en partie tout au moins, un transport par des organismes vivants ayant une vitesse de déplacement appréciable.

Guegueniat P. : L'Antimoine 125 semble être un radionuclide très intéressant pour étudier les déplacements des masses d'eau à partir d'un point de rejet (La Hague en l'occurrence); la réconcentration observée dans les sédiments prélevés à Tréguier pouvait être due à des propriétés particulières de la matière organique de ce sédiment à l'égard du  $^{125}\text{Sb}$  dans l'eau ou parce que ce site constitue une importante zone de sédimentation des particules fines transportées par les courants.

Fowler S.W. (IAEA, Monaco) : Do you think that the difference in concentration factor observed in laboratory experiments and in situ measurements might be due to the different physical-chemical forms released by the plant ?

What do you know about  $^{125}\text{Sb}$  in the Mediterranean Sea ? It might be instructive to search off the mouth of the Rhone river.

Guegueniat P. : Yes, but we have to consider also the rate of hydrolysis of antimony which seems to be very low: the laboratory expe-

riments are limited in time and antimony stays in a soluble state.

I have no results about Mediterranean Sea but the values given by Georgescu (maximum value in sea water: 15 pCi/l) are very high in comparison to the result obtained in La Hague (maximum value: 5.6 pCi/l).

Livingston H.D. (USA) : With regard to the source of  $^{125}\text{Sb}$  in the Danube, I thought someone said yesterday that there were no nuclear facilities which released into the Danube. But there surely must be some, in Austria, I think, otherwise it would not be possible that  $^{125}\text{Sb}$  was being detected. (comment).

Huynh-Ngoc L. (IAEA, Monaco) : Est-ce que l'adsorption se fait en milieu acide ou en milieu basique ?

Le rendement est-il identique pour les métaux lourds que pour l'antimoine ( $^{125}\text{Sb}$ ) ?

Guegueniat P. : L'adsorption se fait à pH 8, le rendement de l'adsorption est de 50% ; il serait de 100% à pH 4 mais dans ce cas de nombreux autres éléments tels que le zinc ne seraient plus fixés. Nous cherchons à fixer un maximum d'élément sur  $\text{MnO}_2$ .

Des éléments tels que le sélénium ou l'arsenic semblent être entraînés par  $\text{MnO}_2$  avec des rendements équivalents à celui de l'antimoine. Par contre Co - Zn - Cr III - Pb - Cu - Ni sont entraînés avec des rendements de l'ordre de 90-100% pour les formes non complexées par la matière organique.

Guary J.C. (IAEA, Monaco) : Les données expérimentales que vous citez concernant l'accumulation du  $^{125}\text{Sb}$  par les sédiments font état d'un facteur de concentration de 50, après une période de 1 mois. Avez-vous changé la solution contaminante durant cette période ?

Vous avez cité des valeurs expérimentales des FC du  $^{125}\text{Sb}$  pour les ascidies (=5). Comparées aux valeurs des FC in situ que vous obtenez, elles paraissent extrêmement faibles. Cela est probablement dû au processus expérimental utilisé qui ne tient probablement aucun compte des phénomènes de complexation de l'antimoine pouvant intervenir durant une période d'accumulation prolongée. Avez-vous quelques commentaires à faire à ce sujet ?

Guegueniat P. : La solution contaminante n'a pas été changée, les facteurs de concentration sont très faibles car la fixation de l'antimoine, fonction vraisemblablement d'une hydrolyse, doit se prolonger pendant des mois ou même des années pour parvenir à une fixation totale.

Les faibles valeurs expérimentales obtenues par Amiard (1973) comparativement à nos propres valeurs in situ pour Dendrodoa peuvent dépendre également des faibles vitesses d'hydrolyse; je pense qu'il est très difficile de réaliser expérimentalement des études sur le comportement du  $^{125}\text{Sb}$  : il faudrait changer l'eau tous les jours pendant une ou plusieurs années. Il se peut également qu'il se produise expérimentalement une complexation de ce radionuclide par la matière organique mais l'Auteur cité n'en fait pas mention: il invoque pour expliquer la différence entre comportement in situ de l'antimoine stable et comportement expérimental du  $^{125}\text{Sb}$  des différences entre formes physico-chimiques.

