

A comparison of the behaviour of <sup>51</sup>Cr in the trivalent and hexavalent states in three mollusc species

Catherine PAPADOPOULOU and Maria STAMOULI

"Demokritos" National Research Center, Institute of Physical Chemistry, ATTIKI (Greece)

The presence of radioactive <sup>51</sup>Cr in the marine environment has been pointed out previously by several investigators. Chromium-51 is found in sea water in the trivalent and hexavalent states (FUKAI, 1967). In our previous papers (PAPADOPOULOU *et al.*, 1986, STAMOULI and PAPADOPOULOU, 1988, PAPADOPOULOU and STAMOULI, 1989, STAMOULI and PAPADOPOULOU, 1990) we studied the accumulation of <sup>51</sup>Cr in the trivalent and hexavalent forms in various mollusc species. Based on the results of these studies we thought that a comparison of the accumulation of the two different valence states of <sup>51</sup>Cr by these species would be of interest.

The mollusc species studied were *Venus verrucosa*, *Venerupis aureus* and *Mytilus galloprovincialis*. These edible species, which are common in Greek coastal waters and have a commercial value, were sampled from a farm in Salamis Island, Saronikos Gulf (Greece).

The uptake experiments were performed in different aquaria for each species (T=20°C, S=38‰) using the gamma ray emitting radioisotope <sup>51</sup>Cr (H.L. 27.8 d) in the trivalent state (as chromic chloride) or in the hexavalent state (as sodium chromate) at radioactivity concentration 40 µCi <sup>51</sup>Cr/20 l sea water. The uptake experiments lasted 20-27 days. After the end of the uptake experiments the distribution and concentration of the accumulated <sup>51</sup>Cr in the trivalent or hexavalent forms in the different parts of the bodies of the mollusc species were determined.

The accumulation of trivalent <sup>51</sup>Cr by the three species was found to follow a similar pattern: In the first days of the uptake experiments <sup>51</sup>Cr(III) was rapidly concentrated and reached a stable level within a few days (8-10 days). Medium concentration factors were determined (K=65 in *Venus verrucosa*, K=47 in *Venerupis aureus* and K=55 in *Mytilus galloprovincialis*). The accumulation of hexavalent <sup>51</sup>Cr followed also a similar pattern in the three mollusc species but different from that of the trivalent <sup>51</sup>Cr. After the more rapid uptake of <sup>51</sup>Cr(VI) during the first days of the experiments the rate of accumulation was found to decrease; but, over a period of 27 days equilibrium concentrations were not attained. The uptake of hexavalent <sup>51</sup>Cr by these species was low, the concentration factors after 27 days reaching the values K=2 in *Venus verrucosa*, K=4.7 in *Venerupis aureus* and K=6.1 in *Mytilus galloprovincialis*.

Comparison of the distribution patterns of <sup>51</sup>Cr in the trivalent and hexavalent states in the tissues of the three mollusc species showed that the percentage of the whole body <sup>51</sup>Cr(VI) radioactivity determined in the soft parts was higher than that of <sup>51</sup>Cr(III). Among the soft parts of these species the percentage of <sup>51</sup>Cr(VI) detected in viscera showed lower values than that of <sup>51</sup>Cr(III), while the fractions of <sup>51</sup>Cr(VI) determined in muscle, mantle and gills were higher than those of <sup>51</sup>Cr(III).

Based on the above mentioned results it could be noted that the physiological behaviour of chromium in the studied mollusc species seems to be influenced by its valence state.

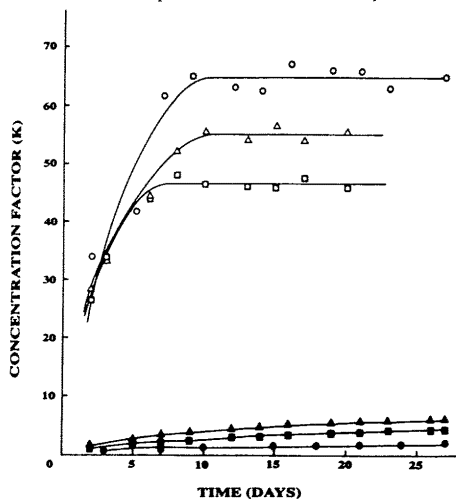


Fig. 1. Comparison of the accumulation of <sup>51</sup>Cr in trivalent and hexavalent states by three mollusc species.

- 1) *Venus verrucosa*: ○ <sup>51</sup>Cr(III), ● <sup>51</sup>Cr(VI),
- 2) *Venerupis aureus*: □ <sup>51</sup>Cr(III), ■ <sup>51</sup>Cr(VI),
- 3) *Mytilus galloprovincialis*: △ <sup>51</sup>Cr(III), ▲ <sup>51</sup>Cr(VI)

REFERENCES

FUKAI R. & VAS D., 1967.- A differential method of analysis for trivalent and hexavalent chromium in sea-water. *Journal of the Oceanographical Society of Japan*, 22:298-304.  
 PAPADOPOULOU C. *et al.*, 1986.- Ag-110m and Cr-51 uptake by the mollusc *Venus verrucosa*. XXXth Congress and Plenary Assembly of I.C.S.E.M. Palma, Majorca, Spain 20-25 Oct. 1986. *Publ. Rapp. et Proc. Verbaux des Réunions*, 30(2), R-114:216.  
 PAPADOPOULOU C. & STAMOULI M., 1989.- Chromate bioavailability to the mollusc *Venus verrucosa*. *Toxicological and Environmental Chemistry* 20:249-254.  
 STAMOULI M. & PAPADOPOULOU C., 1988.- Trivalent Cr-51 Bioaccumulation Study in two mollusc species. XXXth Congress and Plenary Assembly of I.C.S.E.M., Athens, Greece, 17-22 Oct. 1988. *Publ. Rapp. et Proc. Verbaux des Réunions*, 31(2) 249.  
 STAMOULI M. & PAPADOPOULOU C., 1990.- Chromate bioavailability in two benthic invertebrates. XXXIth Congress and Plenary Assembly of I.C.S.E.M., Perpignan, France, 15-20 Oct. 1990. *Publ. Rapp. et Procès Verbaux des Réunions*, 32 (1) 231.

Etude de l'élimination du <sup>134</sup>Cs et <sup>137</sup>Cs provenant des retombées de Tchernobyl chez *Mytilus Sp.* prélevées à Nice

Anne-Sylvie PRUCHON et Sabine CHARMASSON

Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, IPSN/CEA, Station d'Etudes Radioécologiques en Méditerranée, c/o IFREMER-CT, LA SEYNE SUR MER (France)

Les retombées de l'explosion du réacteur 4 de la centrale de Tchernobyl le 26 Avril 1986, ont été significatives sur l'est du littoral méditerranéen français. Depuis 1983, des prélèvements de *Mytilus sp.* sont collectés mensuellement à différentes stations du littoral méditerranéen dans le cadre d'un réseau d'observation de l'ensemble des côtes françaises. Parmi ces stations, celle de Nice constituait jusqu'en Avril 1986 une station uniquement influencée par les retombées atmosphériques des tirs d'armes nucléaires réalisés dans le passé. Après Tchernobyl les échantillons révèlent l'apparition de toute une série de radioéléments et notamment des <sup>134</sup>Cs, <sup>103</sup>Ru, <sup>106</sup>Ru et un accroissement des teneurs en <sup>137</sup>Cs. CALMET *et al.*, (1988) ont étudié l'élimination du <sup>103</sup>Ru et du <sup>106</sup>Ru, éléments à période plus courte que le <sup>134</sup>Cs et le <sup>137</sup>Cs, et qui n'ont plus été détectés respectivement à partir de janvier et décembre 1987. Nous abordons ici l'étude de l'élimination du <sup>134</sup>Cs, élément qui a été détecté jusqu'en septembre 1988 et du <sup>137</sup>Cs, qui est trouvé à partir de novembre 1988 à des niveaux analogues à la période précédant l'accident de Tchernobyl.

Leur élimination a été étudiée à l'aide d'un modèle dérivé de BADIE *et al.*, (1985). Il décrit l'évolution de la concentration en radioéléments dans un organisme représenté par un système à deux compartiments échangeant entre eux et avec le milieu extérieur des radioéléments (figure 1). Certaines hypothèses simplificatrices permettent d'aboutir à une solution analytique, exprimant la cinétique d'élimination du radioélément par l'organisme en fonction du temps:

$$C(t) = C(t_0) [ A_1 e^{-(\lambda_1 + \lambda_p)t} + A_2 e^{-(\lambda_2 + \lambda_p)t} ]$$

$\lambda_1 = \ln(2)/Tb_1$  avec  $Tb_1$  le temps mis par un organisme pour éliminer la moitié du polluant radioactif qu'il a incorporé (période biologique).

$\lambda_p$  (décroissance physique) =  $\ln(2)/Tp$  avec  $Tp$  période physique du radioélément.

$A_i$  : contribution du compartiment  $i$  dans l'élimination d'un radioélément (%) avec  $\sum A_i = 100\%$ ,  
 $C(t_0)$  : concentration initiale en radioéléments dans l'organisme.

Les paramètres du modèle sont ajustés par la méthode de Gauss-Marquard qui minimise la Somme des Carrés des Ecarts (SCE) entre les valeurs observées et les valeurs calculées par le modèle.

Les paramètres de l'élimination des isotopes du césium sont regroupés dans le tableau 1. Les périodes biologiques sont du même ordre de grandeur que celles trouvées à Monaco par WHITEHEAD *et al.*, (1988). Les isotopes du césium (<sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs) présentent des périodes biologiques longues plus importantes, de l'ordre de 300-500 jours, par rapport à ceux du ruthénium (<sup>103</sup>Ru, <sup>106</sup>Ru), environ 100 jours (CALMET *et al.*, 1988). Ceci est certainement imputable au fait que le césium est un analogue du potassium qui joue un rôle dans le métabolisme des organismes alors que le ruthénium n'a aucun rôle biologique connu. Les isotopes du césium entrent donc dans les structures des organismes notamment les muscles et leur déuration est de ce fait plus longue.

| Lieu      | Tb <sub>1</sub> (jours)<br>A <sub>1</sub> (%) | <sup>134</sup> Cs | <sup>137</sup> Cs |
|-----------|---|-------------------|-------------------|
| Nice      | Tb <sub>1</sub>                               | 24,5              | 22,3              |
|           | Tb <sub>2</sub>                               | 489,2             | 382               |
|           | A <sub>1</sub><br>A <sub>2</sub>              | 94<br>6           | 93<br>7           |
| Monaco(*) | Tb <sub>1</sub>                               | 14                | 14                |
|           | Tb <sub>2</sub>                               | 300               | 300               |

Tableau 1 : Périodes biologiques (Tb<sub>1</sub>) et contributions relatives (A<sub>1</sub>) après ajustement d'un modèle à 2 compartiments pour l'élimination du <sup>134</sup>Cs et du <sup>137</sup>Cs dans les moules prélevées à Nice et (\*) résultats obtenus par WHITEHEAD *et al.*, (1988) à Monaco.

Les contributions du compartiment I sont très élevées (>90%). En effet, VAN WEERS (1973) montre que pour une période d'accumulation courte, comme c'est le cas ici, la phase d'élimination est courte et se traduit par une augmentation de la contribution du compartiment à composante rapide A<sub>1</sub> par rapport à celle du compartiment à élimination lente A<sub>2</sub>.

Les prélèvements de moules à Nice dans le cadre du réseau d'observation ont été réalisés pour le mois d'Avril, le 21 donc juste avant l'accident et pour le mois de Mai, le 22 soit 18 jours environ après les retombées maximales sur cette région. Une estimation des concentrations initiales C(t<sub>0</sub>) au 4 Mai 1986, date des retombées maximales sur cette région (BALLESTRA *et al.*, 1987 et FOWLER *et al.*, 1987), a donc été réalisée avec le modèle pré-cité et les valeurs suivantes ont été déterminées: 164 Bq.kg<sup>-1</sup> de cendres dans la chair des moules pour le <sup>134</sup>Cs et 392 pour le <sup>137</sup>Cs. Ces valeurs sont comparables à celles trouvées par WHITEHEAD *et al.*, (1988) et apparaissent conformes au rapport isotopique des <sup>134</sup>Cs et <sup>137</sup>Cs caractéristique des retombées de Tchernobyl (voisin de 0,5).

Remerciements :

Les mesures *in situ* dont nous disposons font partie des résultats d'un réseau d'observation de la radioactivité du littoral français mis en place depuis 1983 par le Service d'Etudes Appliquées de Protection Sanitaire du Centre d'Etudes de Fontenay-aux-Roses.

REFERENCES

BADIE C., BELLUAU M., FERNANDEZ J.M. & GONTIER G., 1985. - *Rapport CEA/EdF*, 122 pp.  
 BALLESTRA S.B., HOLM E., WALTON A. & WHITEHEAD N.E., 1987. - *J. Environ. Radioactivity* 5, 391-400.  
 CALMET D., CHARMASSON S., GONTIER G. & DABURON M.-L., 1988. - *Ive Symposium International de Radioécologie de Cadarache*, 14-18 Mars 1988, C18-C31.  
 FOWLER S.W., BUAT-MÉNARD P., YOKOYAMA Y., BALLESTRA S., HOLM E. & VAN NGUYEN H., 1987. - *Nature*, vol. 329, 56-58.  
 VAN WEERS A.W., 1973. - *IAEA Proc. Ser.*, IAEA-SM-158/24, 385-401.  
 WHITEHEAD N.C., BALLESTRA S., HOLM E. & HUYNH-NGOC L., 1988. - *J. Environ. Radioactivity* 7, 107-121.