ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA CONTAMINATION PAR LE CÉRIUM 144 ET LE FER 59 D'UN SÉDIMENT A ARENICOLA MARINA L. (ANNÉLIDE POLYCHÈTE).

par

C. Amiard-Triquet

Commissariat à l'Energie Atomique, Département de Protection, B.P. no », 92260 Fontenay-aux-Roses et Laboratoire d'Ecologie animale et Biologie marine, Institut des Sciences de la Nature, B.P. no 1044, 44037 Nantes Cedex

Résumé

- 1) Le cérium 144 et le fer 59, introduits dans l'eau de mer sous forme soluble, passent très rapidement sous forme particulaire.
 - 2) Dans cet état, ils se fixent très rapidement à la surface du sédiment.
- 3) Cette fixation entraîne une décontamination pratiquement totale de l'eau de mer.
- 4) Il ne semble pas que les Arénicoles puissent concentrer le cérium 144 et le fer 59 fixés par le sédiment.
- 5) L'activité de fouissage des Vers tend à homogénéiser la répartition du cérium 144 et du fer 59 au sein du sédiment.

Introduction

Bien qu'il ne participe probablement pas aux processus métaboliques (Pillai et Ganguly, 1967) le cérium 144, du fait de sa période relativement longue (285 jours), apparaît comme un radiocontaminant particulièrement important. En effet, d'après Andriopoulos (1963), après 700 jours, le cérium 144 représente le plus fort pourcentage de radioactivité dans un mélange de produits issus de la fission de noyaux d'uranium, de thorium et de plutonium.

Le fer est un oligoélément indispensable à la vie en ce qu'il participe à la constitution des hèmes, substances du sang de formule $C_{34}H_{32}O_4N_4Fe$ (Bessis, 1953). Cependant, le risque de pollution radioactive due au fer est limité par la période relativement courte de l'isotope 59 (46 jours).

La contamination radioactive du sédiment est affectée par la forme physico-chimique des radioisotopes et par les caractéristiques biotiques et abiotiques de l'environnement. Cette contamination est d'autant plus rapide et importante qu'elle se produit dans des eaux

CAHIERS DE BIOLOGIE MARINE Tome XV - 1974 - pp. 483-494 peu profondes où le taux de sédimentation est élevé. Schreiber et coll. (1971) calculent que, dans le golfe de Tarente, le sédiment accumule 10 p. 100 de la radioactivité artificielle.

Il n'a pas été démontré expérimentalement que les animaux benthiques pouvaient prélever directement le zinc 65 (Cross, 1968), le cobalt 60 ou le caesium 137 (Triquet, 1973) du sédiment. Les mêmes auteurs indiquent que la répartition de ces isotopes radioactifs est modifiée par l'activité des espèces fouisseuses dans le sédiment.

En vue de compléter ces résultats, nous allons étudier expérimentalement la contamination par le cérium 144 et le fer 59, d'une espèce fouisseuse arénivore Arenicola marina et du sédiment dans lequel elle vit.

DONNÉES BIBLIOGRAPHIQUES

I - Le cérium et le fer dans l'eau de mer

a) Le cérium.

De nombreux auteurs (Avargues, 1964; Goldschmidt, 1937; Goldberg et coll., 1963; Revelle et Schaefer, 1957; Carpenter et Grant, 1967) ont publié des valeurs de concentration du cérium dans les eaux marines. Les valeurs les plus faibles (1,3.10⁻³µg/l) ont été mesurées en Californie dans les eaux de surface et dans les parages des Bermudes, les plus fortes dans les eaux côtières (0,1 à 0,6 µg/l).

côtières (0,1 à 0,6 µg/1).

Polikarpov (1966) indique que 96 p. 100 de ce cérium se trouve sous forme particulaire et 4 p. 100 sous forme colloïdale. D'après Rice et "Willis (1959), lorsque la salinité diminue, par exemple dans une zone d'estuaire, la taille des particules augmente. Carpenter et Grant (1967), rapportent que le cérium introduit dans l'eau de mer à pH 8 sous forme Ce⁴⁺ s'oxyde rapidement en Ce⁴⁺ ce qui donne lieu à la formation d'un hydroxyde cérique très insoluble. Citant divers auteurs, Khalanski (1971) indique que, dès son introduction dans le milieu marin, le cérium particulaire se fixe sur tous les substrats disponibles. Son adsorption sur la matière organique particulaire s'effectue très rapidement. Le cérium peut être complexé par des composés organiques solubles, ce qui entraîne sa propre solubilisation. Cependant, d'après Khaylov et Finenko (1968), le cérium, lié à des composés solubles anioniques ou neutres de haut poids moléculaire, peut être transféré à la fraction particulaire en raison de l'adsorption permanente de ces composés sur les particules de l'eau de mer.

b) Coprécipitation du cérium et du fer.

Khalanski (1971) met en évidence une coprécipitation du fer et du cérium en eau de mer. De même, Lowman et coll. (1966) observent, dans les zones d'estuaire, que le taux des éléments principaux dans les eaux fluviales influence les réactions de coprécipitation au contact de l'eau de mer, le principal coprécipitant étant le fer.

c) Le fer.

Polikarpov (1966) mentionne que la concentration du fer dans l'eau de mer, déterminée par divers auteurs, est comprise entre 2.10-6 et 2.10-9g/l. En ce qui concerne la forme physico-chimique du fer, Marchand (1972) rapporte que les formes solubles vraies Fe(OH)₂⁺ et Fe(OH)₂³⁺ seraient, dans l'eau de mer, à des concentrations non détectables. Quant à l'hydroxyde Fe (OH)₃, il se trouve pour 83 p. 100 sous forme particulaire, pour 17 p. 100 sous forme colloïdale.

Marchand (1972) met en évidence l'action solubilisante et complexante de certains composés organiques de l'eau de mer, sur le fer à l'état colloïdal ou particulaire. Cependant, la formation des chélates étant un processus lent (Fukai, 1969), les possibilités de chélation directe avec les molécules organiques in situ semblent faibles. Dans les conditions naturelles, la sorption par la matière particulaire et la concentration par les organismes marins seraient prédominantes. marins seraient prédominantes.

2 - Le cérium et le fer dans les sédiments

Pillai et coll. (1970) ont mesuré la concentration du cérium 144 dans divers sédiments provenant de la zone côtière. Elle varie entre 3 et

189,7 pCi/g.

Parker et coll. (1963) observent des facteurs de concentration du fer dans le sédiment, par rapport à l'eau, compris entre 5 et 13. Lowman et coll. (1966), analysant les sédiments d'une baie, obtiennent pour le fer une valeur de 50 000 µg/g de sédiment incinéré. Dans l'humus purifié extrait d'un sédiment marin, Pillai et coll. (1970) mesurent une concentration du for de 1 305 page. fer de 1 395 ppm.

Schreiber (1971) constate que les radioéléments se fixent aux niveaux les plus superficiels du sédiment.

Etudiant la migration des radionucléides dans les sédiments, Duursma et Bosch (1970) considèrent qu'elle peut « être grossièrement assimilée à un processus de diffusion », mais qu'elle est retardée par des phénomènes de sorption. Parmi les facteurs pouvant influer sur la contamination radioactive du sédiment, Cerrai et coll. (1970) citent :

— la teneur du sédiment en argile,
— le taux de sédimentation,

- le taux de diffusion dans le sédiment profond,

— les apports terrigènes, - l'activité animale,

— les apports d'eau douce entraînant une modification du pH et de la concentration des différents ions.

La forme physico-chimique sous laquelle les radioéléments sont introduits dans l'eau affecte grandement leur comportement vis-à-vis du sédiment. Les formes particulaires, comme le cérium et le fer, sont englobées avec les particules clastiques et authigéniques et sédimentent constamment vers le fond (Schreiber, 1971). La matière organique et, en particulier, les acides humiques sont capables de complexer des quantités variables de métal (Rashid, 1971, Koshy et coll., 1969).

Le type de fixation détermine la capacité d'échange entre le sédiment et l'eau.

3 - Le cérium et le fer dans les organismes marins

a) Le cérium.

Polikarpov (1966), synthétisant les données de nombreux auteurs, constate que la concentration du cérium 144 par les organismes marins est rapide. Chez les Crabes, l'état d'équilibre peut être atteint en 3 heures par l'animal entier, comme au niveau de divers organes.

Les facteurs de concentration, qui sont élevés pour la plupart des Invertébrés, sont considérablement plus faibles pour les Poissons (Tableau 1, d'après Polikarpov).

Chez les espèces aquatiques, le cérium se concentre essentiellement dans les tissus minéralisés et le foie. Les muscles et les viscères se contaminent peu (facteurs de concentration de quelques unités à quelques dizaines d'unités).

Les surfaces biologiques sur lesquelles le radionucléide peut être adsorbé jouent un rôle considérable dans la contamination des organismes.

TABLEAU 1 Facteurs de concentration du cérium et du fer dans les organismes marins (d'après Polikarpov).

(d apies 1 olikaipov).			
Organisme	Radiocérium	Cérium stable	Fer stable
Eponges <i>Halichondria</i> sp.			10 000
Coelentérés Actinia equina Metridium dianthus Cyanea capillata	140		2 400 300
Crustacés Leander sp. viscères muscles squelette externe	200 25 2		
Penaeus japonicns muscles Palinurus japonicns			1 000
muscles			1 000
Neptunus trituberculata muscles			2 000
Mollusques Mutilus gallopTovincialis coquille tissus branchies muscles Venerupis japonica muscles	40 1 000 20 4		7 000
Haliotis gigantea muscles			3 000
Echinodermes Stichopus japonicus muscles viscères			78 000 1 000
Poissons Pleuronectes sp. animal entier muscles Chasmichthys galosus muscles	5 0,27	2-25	600
Scomber japonicus muscles Trachirus japonicus muscles	0,27		1 800 700

b) Le fer.

Dans une revue de la signification biologique des produits d'activation, Mauchline (1961) indique que le fer est nécessaire à la synthèse des pigments respiratoires. Ce processus est précisé par Bessis (1953). Le fer participe à la composition de l'érythrocruorine des Crustacés inférieurs, de la plupart des Annélides, de quelques Gastéropodes et Echinodermes.

Mauchline (1961) rapporte encore que le fer participe à la composition de nombreuses protéines et est un constituant essentiel des groupements prosthétiques de beaucoup d'enzymes.

Polikarpov (1966) observe que la plupart des espèces de la Mer Noire concentrent le fer. Un état d'équilibre est atteint 8 à 16 jours après le début de l'expérimentation.

Citant divers auteurs, Polikarpoy (1966) rapporte que les facteurs de concentration sont variables à l'intérieur d'un même groupe zoologique (de quelques centaines à quelques dizaines de milliers). Les facteurs de concentration des organes internes et des muscles en particulier sont généralement élevés (Tableau 1). D'après Mauchline (1961), le foie des Crustacés Malacostracés constitue un site d'accumulation du fer.

Lowman et coll. (1966) étudient la répartition du fer en milieu sédimentaire. La concentration en fer (exprimée en μg/g de cendre) est de 110 000 chez des Polychètes ayant un régime de deposit-feeders stricts et vivant dans un sédiment contenant 50 000 μg/g de fer.

Dans le même milieu, la concentration du fer dans des détritus organiques est de 50 000 μg/g. Par contre, ces auteurs ne détectent pas d'accumulation du fer mesurable sur un individu chez des Polychètes carnivores que present pas un régime strict de deposit-feeders.

ou n'ayant pas un régime strict de deposit-feeders.

c) Comparaison de la contamination des organismes marins par le cérium et le fer.

En résumé, il semble donc que dans la contamination des organismes par le cérium, le processus de contamination externe par adsorption prédomine.

En ce qui concerne le fer, c'est la contamination interne qui constitue le phénomène le plus important.

CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

Les Arénicoles et le sédiment dans lequel elles vivaient ont été prélevés à Urville-Hague (Manche). Il s'agit de Vers d'assez petite taille dont le poids varie entre 0,6 et 2,5 g. Le sédiment est un sable fin de granulométrie caractérisée par un maximum de grains compris entre 0,125 et 0,25 mm.

Les aquariums sont préparés ainsi que le montre la figure 1. Un microfitre NEPT est placé au fond de l'aquarium sous une couche de laine de verre puis de sédiment (quelques centimètres). Les «tubes d'élevage », constitués par un tronçon de tuyau de polyvinyle PVC de 25 cm de hauteur pour un diamètre de 12 cm et fermés à la base par du filet à plancton en nylon (vide de maille : 1,120 mm), sont remplis de sable jusqu'à 3 cm du bord. Les espaces entre les tubes sont également comblés pour éviter une filtration préférentielle dans cette zone.

L'eau de mer qui surmonte le sédiment a été prélevée à la côte et a été constamment aérée.

Pendant toute la durée de l'expérience, la température a été maintenue entre 14 et 16 °C.

Le cérium 144 a été introduit dans l'eau sous forme de chlorure en solution HC1 sans entraîneur, à raison de $10~\mu.Ci/l$. Cela correspond à un apport pondéral de cérium de $2,9.10^{-3}~\mu g/l$, c'est-à-dire environ 1/100 de la concentration trouvée dans les eaux côtières.

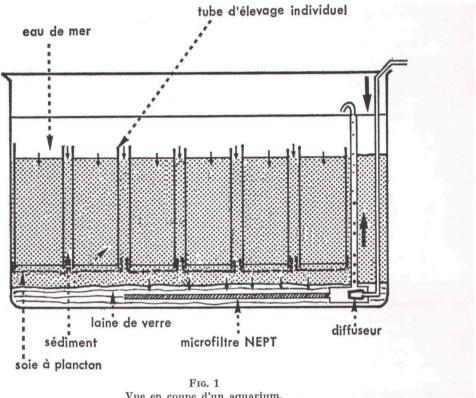
Le fer 59 a été introduit dans l'eau sous forme de chlorure en solution HC1 à raison de 10 µCi/l. L'activité spécifique de la source utilisée étant de 15 à 25 mCi/mg, cette contamination correspond à un apport pondéral de fer (radiofer + fer stable) de 0,4 à 0,7 µg/l, c'està-dire 1/50 à 1/3 de la concentration trouvée dans les eaux côtières.

En aucun cas l'addition des solutions radioactives n'a entraîné une modification du pH de l'eau de mer.

Des prélèvements de sédiment par carottage ont été effectués avant la mise en contamination des animaux.

Les Arénicoles sont placées en milieu contaminé, à raison de une par tube d'élevage, six jours après la contamination de l'eau. Elles s'enfoncent en quelques minutes dans le sédiment.

Pour le cérium 144, une expérience complémentaire a été réalisée



Vue en coupe d'un aquarium. grandes flèches : circuit de l'air comprimé petites flèches : circuit de l'eau de mer

au cours de laquelle les animaux ont été placés en acclimatation dans les tubes d'élevage avant que l'eau ne soit contaminée.

Des prélèvements concomitants d'eau (5 cm³), de sédiment (par carottage) et d'animaux ont été réalisés 1, 2, 5, 12, 26, 40, 56 jours après cette mise en contamination.

La forme physico-chimique des radioéléments a été suivie par fixation de quelques cm³ de l'eau des aquariums sur résine échangeuse d'ions suivie d'une élution à l'eau de mer.

En ce qui concerne les animaux, ils ont été rincés à l'eau de mer non contaminée, essorés sur papier absorbant, leur tube digestif vidé aussi bien que possible de son contenu sédimentaire. Enfin, ils ont été pesés.

Les « carottes » de sédiment ont été partagées en six tronçons (couches 1 à 6) sur papier filtre, ce qui a éliminé une grande partie de l'eau interstitielle. Elles ont été ensuite placées sur les clayettes d'un séchoir à courant d'air ascendant. Le poids de chaque tronçon a été mesuré sur le sédiment sec.

Les mesures de radioactivité ont été effectuées à l'aide d'un détecteur à cristal-puits d'iodure de sodium activé par le thallium et d'un analyseur 400 canaux (INTERTECHNIQUE SA 40 B).

Les résultats sont exprimés en impulsions par minute et par gramme de tissus frais pour les spécimens biologiques, par gramme de sédiment sec (IPM/g).

RÉSULTATS

I - Le cérium 144 et le fer 59 dans l'eau des aquariums

Le cérium 144 introduit dans l'eau de mer à l'état soluble passe totalement et en quelques heures à l'état particulaire. La radioactivité de l'eau diminue très rapidement et six jours après la contamination de l'eau, elle n'est plus détectable avec notre technique d'analyse.

Le fer introduit dans l'eau de mer sous forme soluble passe très rapidement à des formes colloïdales ou particulaires.

La radioactivité de l'eau diminue très rapidement. Elle reste détectable tout au long de l'expérience, mais si faible (environ une impulsion par mn et par cm³) que notre technique d'analyse ne permet pas d'en donner la mesure précise.

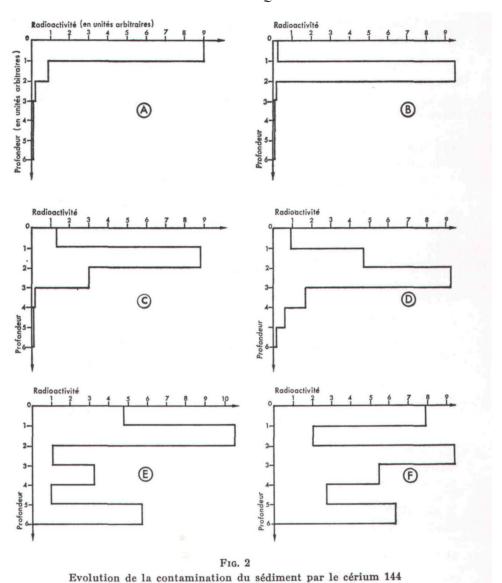
2 - Le cérium 144 et le fer 59 dans le sédiment

a) Le cérium 144.

Avant la mise en contamination des animaux, au moment où la radioactivité de l'eau devient pratiquement nulle, on observe un maximum de contamination par le cérium 144 à la superficie du sédiment. La radioactivité de la couche superficielle 1 (400 à 8 000 IPM/g) est environ dix fois plus importante que celle de la couche sous-jacente 2 (Fig. 2, A).

La répartition du radiocontaminant à la surface du sédiment est très inégale.

Après deux jours de stabulation des animaux en milieu contaminé, la couche la plus radioactive est la couche 2 (Fig. 2, B). Après cinq jours, la couche 2 est toujours la plus contaminée, mais la radioactivité de la couche 3 a augmenté (Fig. 2, C). Au cours du temps la couche ayant fixé initialement le plus de cérium 144 s'enfonce et les différences entre les couches s'atténuent (Fig. 2, D à F).



en présence d'Arénicoles.

A : avant mise en contamination des animaux ; B : après 2 jours ; C : après 5 jours ; D : après 12 jours ; E : après 26 jours ; F : après 40 jours.

b) Le fer 59.

Comme précédemment, on observe un maximum de contamination par le fer à la superficie du sédiment. La couche 1 (250 à 25 000 IPM/g) est environ cinq fois plus contaminée que la couche 2 (Fig. 3, A). La répartition du fer 59 à la surface du sédiment est très hétérogène.

L'évolution de la répartition du fer 59 dans le sédiment suit les mêmes modalités générales que celle du cérium 144 : enfoncement

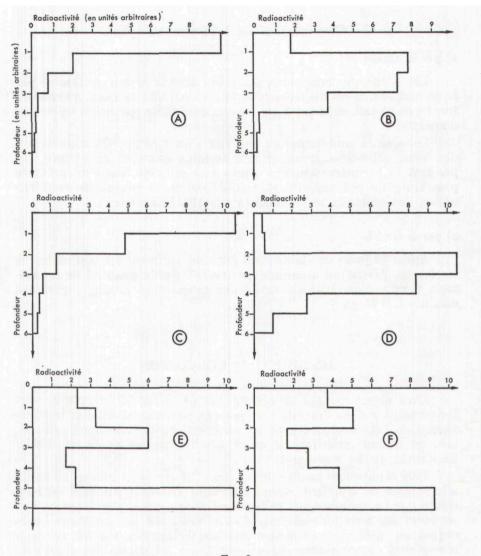


Fig. 3

Evolution de la contamination du sédiment par le fer 59 en présence d'Arénicoles.

A: avant mise en contamination des animaux; B: après 5 jours, échantillon 1; C: après 5 jours, échantillon 2; D: après 12 jours; E: après 26 jours; F: après 40 jours.

progressif de la couche la plus contaminée et homogénéisation du taux de radioactivité au sein des différentes couches (Fig. 3, B à F).

Remarque : Il s'agit là d'une description globale du phénomène mais, pour les deux radionucléides, les différentes étapes peuvent être franchies plus ou moins rapidement en fonction du comportement plus ou moins actif de chaque individu.

3 - Contamination des spécimens biologiques

a) par le cérium 144.

Les Arénicoles mises en stabulation dans le milieu contaminé par le cérium 144, après disparition de la radioactivité de l'eau, ne concentrent pas ce radioélément à un niveau détectable par notre technique d'analyse.

Lorsque la contamination de l'eau a eu lieu après acclimatation des Vers, ceux-ci accumulent une certaine quantité de cérium 144 pendant la première semaine. Après une semaine, l'eau ne présente plus trace de radioactivité et, parallèlement, le niveau de contamination des animaux se stabilise (à 200 IPM/g environ).

b) par le fer 59.

Après 40 jours de stabulation dans un sédiment contaminé par le fer 59, les Vers n'ont accumulé qu'une très faible quantité de cet isotope. Leur radioactivité est de l'ordre de quelques IPM/g à quelques dizaines d'IPM/g.

DISCUSSION ET CONCLUSION

Nous observons que le cérium 144 et le fer 59 introduits sous forme soluble dans l'eau de mer passent rapidement à l'état particulaire. Cela est en accord avec les observations de nombreux auteurs, tant en milieu expérimental qu'in *situ* (Carpenter et Grant, 1967; Khalanski, 1971; Marchand, 1972).

Très rapidement encore, le cérium et le fer particulaires se fixent à la surface du sédiment, ce qui s'explique aisément puisqu'il est bien connu que les radioisotopes se trouvant dans cet état physico-chimique se fixent sur tous les substrats disponibles : sur les particules organiques ou minérales, en suspension ou sédimentés, sur les surfaces biologiques ou, en milieu expérimental, sur les parois des récipients (Schreiber, 1971 ; Khalanski, 1971 ; Schnitzer et Skinner, 1965 ; Pillai et coll., 1970 ; Parker et coll., 1963).

L'activité de fouissage des animaux entraîne un remaniement important du sédiment. L'Arénicole puise le sédiment qu'elle ingère 5 centimètres environ au-dessous de la surface (Amoureux, 1963), c'est-à-dire dans une zone qui se trouve être peu contaminée quand l'animal est introduit dans le milieu expérimental. Ce sédiment est ensuite rejeté à la surface sous forme de « tortillons ». De ce fait, la répartition est progressivement modifiée dans le sens d'une homogénéisation.

Lorsque la radioactivité de l'eau est nulle (cérium 144) ou extrêmement faible (fer 59), les Arénicoles placées dans le sédiment contaminé n'accumulent respectivement pas ou très peu de radionucléides. Il ne semble donc pas que les Vers puissent concentrer le cérium 144 et le fer 59 fixés par le sédiment.

Ces résultats semblent en contradiction avec ceux de Lowman et coll. (1966) qui, dans un milieu sédimentaire riche en fer, observent une forte concentration de cet élément chez les Polychètes ayant un régime alimentaire de deposit-feeders stricts. Cependant, il est évidemment délicat de comparer des résultats obtenus *in situ* et en milieu expérimental.

D'autre part, dans nos conditions expérimentales et sur une période proche de deux mois, il apparaît que la fixation du cérium 144 et du fer 59 sur le sédiment est irréversible. Ce résultat s'oppose aux conclusions tirées par Parker et coll. (1963), d'une étude expérimentale sur les échanges d'oligoéléments (du fer en particulier) entre un sédiment et l'eau qui le recouvre. En effet, d'après ces auteurs, le sédiment superficiel semblerait avoir, à court terme, un rôle important dans le cycle des oligoéléments et dans les échanges entre le substrat et la biosphère.

L'ensemble de ce travail confirme les résultats obtenus antérieurement pour d'autres espèces et d'autres radionucléides (Triquet, 1973 ; Cross, 1968).

Summary

Experimental study of contamination by cerium 144 and iron 59 of a sediment with *Arenicola marina*.

- 1) 144 Ce and 59 Fe are introduced in sea-water in soluble form and give rapidly particulate forms.
 - 2) In this state, they are very rapidly sorbed in the superficial sediment.
 - 3) This sorption will involve an important decontamination of sea-water.
- 4) It does not seem possible that *Arenicola* could concentrate ¹⁴⁴Ce and ⁵⁹Fe sorbed in the sediment.
- 5) The burrowing activity of the worms conducts to homogenize the repartition of $^{\rm I44}{\rm Ce}$ and $^{\rm 59}{\rm Fe}$ in the sediment.

Zusammenfassung

- 1) 144 Ce und 59 Fe, das in Löslicher Form in Seewasser eingefuhrt wird geht in Kurzer Zeit in partikel form über.
- 2) In diesem Zustand werden sie schnell an der oberfläche des Sediments adsorbiert.
 - 3) Diese Adsorbtion bewirkt eine wichtige dekontamination des Meerwassers.
- 4) Es scheint unwahrscheinlich, das *Arenicola* adsorbiertes ¹⁴⁴Ce und ⁵⁹Fe Konzentrieren Kann.
- 5) Die Mittlerfunktion der würmer besteht in einer Homogenisierung von $^{144}\mathrm{Ce}$ und $^{59}\mathrm{Fe}$ im Sediment.

INDEX BIBLIOGRAPHIQUE

- AMOUREUX, L., 1963. Notes biologiques et écologiques sur l'Arénicole. *C.R. Soc. Biol.*, 157, pp. 1711-1715.
- ANDRIOPOULOS, A., 1963. Contribution à l'étude de la contamination des viandes par les produits de fission. *Thèse doctorat vétérinaire, Faculté de Médecine, Paris,* 150 pp.
- AVARGUES, M., 1964. Problèmes posés par le rejet d'effluents radioactifs dans le milieu marin. Colloque de Radioécologie marine, Cherbourg.

- BESSIS, M., 1953. Traité de cytologie sanguine, Masson éd., Paris.
- CARPENTER, J.H. et GRANT, v.E., 1967. Concentration and state of cerium in coastal waters. J. Mar. Res., 25, pp. 228-238.
- CERRAI, E., MEZZADRI, M.G., SCHREIBER, B. et TRIULZI, c., 1970. Some radioactive measurements of sediment samples collected in the North Adriatic Sea. *Energia nucleare*, 17, pp. 176-181.
- CROSS, F.A., 1968. Behavior of certain Radionuclides in a Marine Benthic Amphipod. Thesis, Oregon State University, 63 pp.
- DUURSMA, E.K. et BOSCH, C.J., 1970. Theoritical, experimental and field studies concerning diffusion of radioisotopes in sediments and suspended particles of the sea. Part B: Methods and experiments. Neth. J. Sea Res., 4, pp. 395-469.
- FUKAI, R., 1969. On the chelation of some radionuclides in sea water medium. Rapp. Comm. int. Mer Méditer., 19, pp. 935-936.
- GOLDBERG, E.D., KOIDE, M., SCHMITT, R.A. et SMITH, R.H., 1963. Rare earth distribution in the marine environment. J. Geophys. Res., 68, pp. 4209-4217.
- GOLDSCHMIDT, V.M., 1937. The principles of distribution of chemical elements in minerals and rocks. *J. Chem. Soc, pp.* 655-673.
- KHALANSKI, M., 1971. Contribution à la radioécologie du césium 137 et du cérium 144 dans un biotope d'algues marines intertidales : Fucus serratus L. et Ascophyllum nodosum (L.) Le Jolis. Thèse de 3' cycle, Université de Paris VI.
- KHAYLOV, K.M. et FINENKO, z.z., 1968. Interaction of detritus with high molecular weight components of dissolved organic matter in sea water. *Oceanology*, 8, pp. 376-785
- weight components of dissolved organic matter in sea water. Oceanology, 8, pp. 776-785.

 KOSHY, E., DESAI, M.V.M. et GANGULY, A.K., 1969. Studies on organo-metallic interactions in the marine environment. II Interaction of metallic ions with humic acid from a marine sediment. Curr. Sci., 38, pp. 582-586.

 LOWMAN, F.G., PHELPS, D.K. et MAC CLIN, R., 1966. Interactions of the environmental and biological factors on the distribution of trace elements in the marine environment. Disposal of radioactive wastes into seas, oceans and surface waters, Vienna, I.A.E.A., pp. 249-265.

 MARCHAND, M., 1972. Considérations sur les formes physico-chimiques du cobalt, manganèse, zinc, chrome et fer dans une eau de mer enrichie ou non en matière organique. Thèse 3° cycle, Université de Paris VI.

 MAUCHLINE, J., 1961. A review of the biological significance of certain neutron induced radio-isotopes in the marine environment. U.K.A.E.A., Production and engineering groups, PG Report 248 (W).

 PARKER, P.L., GIBBS, A. et LAWLER, R., 1963. Cobalt, iron and manganese in a Texas bay. Publ. Inst. mar. Sci. Univ. Tex., 9, pp. 28-32.

 PILLAI, K.C., GANAPATHY, S., DESAI, M.V.M. et GANGULY, A.K., 1970. Some aspects of the distribution of radionuclides in the coastal environment. I.A.E.A. Panel Meeting on Procedures for establishing limits for radionuclides in the sea, Vienna.

- PILLAI, K.C. et GANGULY, A.K., 1967. Systematics of acceptable radioactive contamination levels in the environment. *Prog. nucl. Energy*, series 12, Health Physics, 2 (sous presse).
- POLIKARPOV, G.G., 1966. Radioecology of aquatic organisms. North Holland Publishing Company.
- RASHID, M.A., 1971. Role of humic acid of marine origin and their different molecular weight fractions in complexing di- and trivalent metals. *Soil Science*, 111, pp. 298-306.
- REVELLE, R. et schAEFFER, M., 1957. General considerations concerning the oceans as a receptacle for artificially radioactive materials. The effects of atomic radiations on oceanography and fisheries. National Academy of Sciences. Washington D.C. Publ. 551, pp. 1-25.

 RICE, T.R., et WILLIS, M.v., 1959. Uptake, accumulation and loss of 114Ce by algae. Limnol. Oceanogr., 4, pp. 277-290.
- SCHNITZER, M. et SKINNER, S.I.M.. 1965. Organo-metallic interactions in soils: 4 - carboxyl and hydroxyl groups in organic matter and metal retention. Soil Science, 99, pp. 278-284.
- SCHREIBER, B., 1971. Significance of sediments in evaluating the radioactive contamination of the sea. Rev. Int. Oceanogr. Med., 21, pp. 27-43.
- SCHREIBER, B., TASSI PELATI, L. et MEZZADRI, M.G., 1971. Radioecology research in Tarento Gulf. I: Radiometric measurements on sea water, plankton, benthic organisms and sediments. Rev. Int. Oceanogr. Med., 21, pp. 135-165.
- TRIQUET, c, 1974. Etude comparative de la contamination par le caesium 137 et le cobalt 60 de quelques Invertébrés marins fouisseurs. Rev. trav. Inst. Sci. Tech. Pêches Marit., sous presse.