

# Données sur les transferts du $^{137}\text{Cs}$ et du $^{60}\text{Co}$ dans un écosystème fluvial : le Rhône

Data on  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  transfer in a river ecosystem

---

L. FOULQUIER(1) , J.P. BAUDIN(2) , A. LAMBRECHTS(1)

---

## RÉSUMÉ

L'étude radioécologique du Rhône permet d'évaluer qualitativement et quantitativement les radionucléides présents dans le fleuve. Les études menées *in situ* posent des questions concernant les modalités de transfert des radionucléides. Dans ce travail des expériences sont mises au point, afin d'analyser les mécanismes de bioconcentration dans les écosystèmes aquatiques. Pour le césium-137 les échanges entre l'eau, le sédiment et divers organismes aquatiques ont permis d'élaborer un modèle mathématique que l'on peut confronter aux valeurs mesurées sur le terrain. En ce qui concerne le Cobalt-60 les auteurs décrivent des expériences permettant l'évaluation de la contribution relative de l'eau et de la nourriture dans l'accumulation du radionucléide par un poisson.

Mots clés : Radionucléides,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , études *in situ*, écosystème fluvial, études expérimentales, modèle mathématique, bioconcentration, élimination.

---

(1) Commissariat à l'énergie atomique, Laboratoire de Radioécologie des Eaux Continentales, DERS/SERE, CEN Cadarache, 13108 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex, France.

(2) Chargé de Recherche au CNRS. Même adresse.

## SUMMARY

The radioecology of the Rhone Basin has been studied for the last 15 years. This has been an opportunity to make a quantitative and qualitative evaluation of radionuclides as a function of their different sources. Special attention is given to  $^{137}\text{Cs}$  (present both in fallout and liquid wastes) and  $^{60}\text{Co}$ , which characterize the liquid wastes of pressurized water reactors. In order to assess the transfer and bioconcentration of these two radionuclides in freshwater ecosystems, several experimental studies were undertaken.

The  $^{137}\text{Cs}$  transfer studies were carried out with a 5-component experimental ecosystem and the data were included in a mathematical model. For  $^{60}\text{Co}$ , the experimental study concerns the relative contribution of water and food in the accumulation of the radionuclide by *Cyprinus carpio*.

Water, sediment, plants and fishes were taken from 60 sampling stations set up along the river (figure 1). Water was filtered, then percolated on resin columns. Sediment, plants and fishes were dried and burnt to ashes in an oven at 500° C. Radioactivity was measured by gamma spectrometry and radiochemistry.

$^{137}\text{Cs}$  experimental transfers were studied between water, sediment, midge larvae, daphnid and carp. These components were taken in pairs in order to estimate the radionuclide transfer from one to the other. Thus ten experiments were carried out (figure 2).

In order to study the relative importance of food and water as  $^{60}\text{Co}$  sources for the carp, an experiment was carried out simultaneously on three homogeneous groups of ten juvenile fishes. The individuals of the first group were maintained in separate aquaria and offered 45 daily rations of labelled food over a 63-day period. Each carp of the other two groups was placed in a compartment of a large tank with contaminated water. One group was fed with radioactive food, the other with non-radioactive food (table 1).

Natural radioactivity remained steady all along the river. It ranged around 1 Bq.l<sup>-1</sup> in water, 2250 Bq.kg<sup>-1</sup> DW in sediment, 1700 Bq.kg<sup>-1</sup> DW in aquatic plants, 110 Bq.kg<sup>-1</sup> WW in fish. The fallout impact was characterized by  $^{137}\text{Cs}$  presence. PWR liquid wastes contained mainly  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ . The Chernobyl fallout gave an increase of Cs and the presence of  $^{103}\text{Ru}$  and  $^{106}\text{Ru}+\text{Rh}$  specially during May and June 1986 which later decreased (tables 2, 3 and 4).

$^{137}\text{Cs}$  transfer between water and sediment was very fast and important. Less than 2 % of the radionuclide was released from sediment into a non-radioactive water. During the transfer from water to chironomids the larvae radioactivity increased steadily (figure 3). Conversely, the transfer from the sediment to larvae did not seem to depend on the contact time. The transfer from water to carp was regular without any steady state during the 63 days of the experiment (figure 3). Then the fish concentration factor was less than 5. For 42 days, the transfer factor from sediment to carp was  $3.6 \cdot 10^{-3}$ . The retention factor from food to carp was 0.03 when fishes were fed with daphnids

and 0.13 with chironomids. An experiment showed that the various ways of  $^{137}\text{Cs}$  transfer could have an added impact. Thus the carp radioactivity was the sum of the separate transfers. Water was responsible for 4 % of the fish  $^{137}\text{Cs}$  concentration, sediment for 45 % and chironomids for 51 %.

It is possible to include the different kinetic equations in a mathematical model. If the radioactivity of one of the components is known, the nuclide concentration can be computed in others, as a relation of the contact time, the quantity and quality of ingested food, etc.... This model gives a concentration factor for juvenile carp of 1000 in 180 days and 500 for 3-year old fish. Considering the field conditions (e.g. seasonal nutritive cycles) the computed concentration factor in fish was between 200 and 350. For a  $1 \text{ mBq.l}^{-1}$   $^{137}\text{Cs}$  concentration in water, the model gave a concentration of 0.2 to 0.35  $\text{Bq.kg}^{-1}$  WW in carp, which was the  $^{137}\text{Cs}$  radioactivity level measured in the Rhone fish before the Chernobyl accident.

During the  $^{60}\text{Co}$  accumulation phase, the mean weight of the fish in the three groups increased exponentially and the resultant relative weight gain was 52-59 % after 63 days (table 5).

The  $^{60}\text{Co}$  accumulation kinetics showed that the steady state should be reached after 165 days for fish exposed to  $^{60}\text{Co}$  in food, 92 days for fish exposed to radiocobalt in water and 120 days for fish exposed to  $^{60}\text{Co}$  in both sources (figure 4). According to the  $^{60}\text{Co}$  concentration in the fish in the three treated groups, the accumulation from water accounted for 75 % of the total radioactivity and the accumulation of the radionuclide from both water and food was in addition.

Depuration of  $^{60}\text{Co}$  from carp was a relatively intensive process reflecting a high Co turnover. Biological half-lives for loss from the long-lived compartment ranged from 35d in fish previously contaminated by food, to 87d in fish previously contaminated by food, to 87d in fish previously contaminated by water (figure 5).

$^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  are the most concentrated radionuclides in liquid wastes of the pressurised water reactors, and they are often measured in the aquatic ecosystem components. Though it accounts for the highest fraction of total radioactivity in the liquid wastes,  $^{60}\text{Co}$  cobalt is not the most concentrated radionuclide in fish. Experimental studies show that it is primarily transferred from the water so it is logical that its concentration in fish remains at a low level. Conversely the  $^{137}\text{Cs}$  has a low concentration in water but as it is transferred simultaneously from water, sediment and food, its concentration in fish is still important. Moreover its 30 years half-life means that the cesium contamination of fish is a long and important process, all the more so as the source terms can add their own effects during time and space.

Key-words : Radionuclides,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , field studies, river ecosystem, laboratory studies, mathematical model, bioconcentration, depuration.

---

## INTRODUCTION

---

Des mesures de radioactivité, effectuées depuis plus de quinze ans, sur des échantillons d'eau, de sédiments, de végétaux aquatiques et de poissons permettent une évaluation qualitative et quantitative des radionucléides présents dans les cours d'eau français. Le Rhône constitue un site particulièrement intéressant à étudier en raison des nombreuses installations nucléaires implantées le long de son cours.

Les études radioécologiques *in situ* permettent d'établir des constats et soulèvent des questions relatives aux modalités de transfert des radionucléides.

Parmi les radionucléides décelés l'attention s'est particulièrement portée sur le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{60}\text{Co}$ . Le premier est présent à la fois dans les retombées des essais nucléaires atmosphériques et dans les effluents liquides des installations nucléaires. Le césium-137 a été prépondérant à la suite de l'accident de Tchernobyl ; ses différents termes sources et sa période physique (30 ans) font que ce radionucléide est toujours présent dans tous les compartiments du fleuve. Le deuxième est caractéristique des effluents liquides des réacteurs à eau pressurisée (BIDARD et BARDIN, 1987).

Des ensembles d'expériences sont effectués afin de quantifier les mécanismes de bioconcentration et d'échanges dans les écosystèmes aquatiques. Pour le  $^{137}\text{Cs}$  une série d'études a permis d'évaluer les facteurs de transferts pour cinq compartiments d'un écosystème expérimental. Les résultats obtenus sont utilisés dans un modèle qui est validé à partir des données de terrain.

La même démarche a été entreprise avec le  $^{60}\text{Co}$ . Le programme expérimental comporte, en particulier, l'étude de son accumulation et de son élimination par la carpe. Après avoir testé l'influence de la température (BAUDIN et FRITSCH, 1988) est présentée l'évaluation des contributions respectives de l'eau et de la nourriture dans l'accumulation du radionucléide.

---

## 1 - MATÉRIEL ET MÉTHODES

---

### 1-1 Etudes *in situ*

Des échantillons sont prélevés régulièrement dans une soixantaine de stations réparties sur l'ensemble du cours du Rhône (figure 1).

L'eau est prélevée à l'aide d'un appareil portatif équipé d'une pompe et d'un système de filtration et de percolation sur résines échangeuses d'ions (MAUBERT et PICAT, 1982). Les caractéristiques de l'eau sont stables sur l'ensemble du fleuve avec un pH de 8. La concentration (en  $\text{mg.l}^{-1}$ ) des cations principaux est de 80 pour le  $\text{Ca}^{++}$ , 11 pour le  $\text{Na}^+$ , 2 pour le  $\text{K}^+$  et 7 pour le  $\text{Mg}^{++}$  ; celles des anions est de 20 pour le  $\text{Cl}^-$ , 50 pour le  $\text{SO}_4^{--}$  et 150 pour le  $\text{CO}_3^{--}$ .

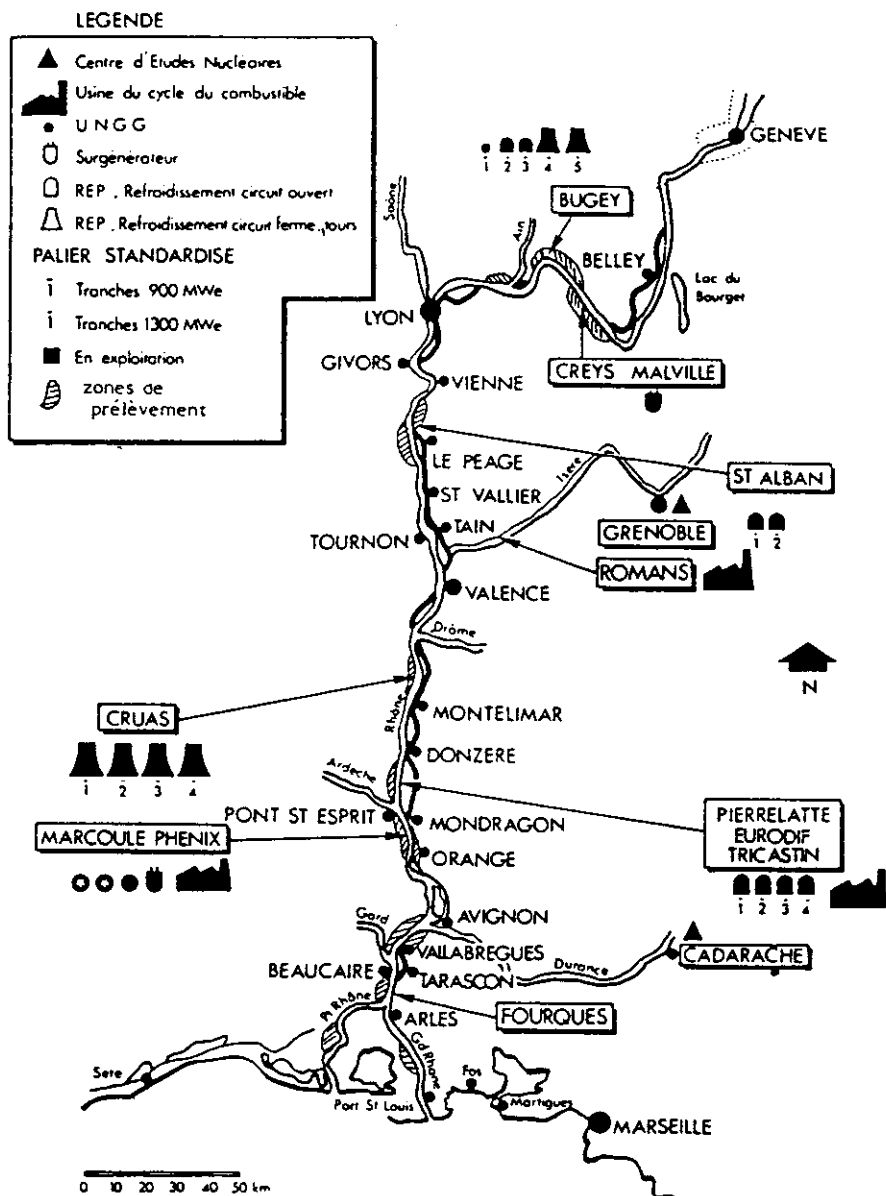


Figure 1. - Aménagement nucléaire du Rhône (1er janvier 1988) et zones de prélèvements.

Figure 1. - Nuclear sites along the Rhône (1st January 1988) and sampling zones.

Le sédiment est collecté au cône de Berthois, placé dans des boîtes métalliques et ramené au laboratoire. Les échantillons sont séchés à 40° C en vue des analyses chimiques, granulométriques et minéralogiques et à 110° C en vue des mesures radioactives et de la détermination des éléments stables, par activation neutronique. Les sédiments sont caractérisés par une forte proportion de particules inférieures à 50 micromètres et une teneur élevée en illites. Les végétaux sont cueillis à la main et les poissons sont prélevés par pêche électrique. Les échantillons biologiques sont séchés 48 heures à 105° C puis incinérés dans un four à 550° C.

Les mesures de radioactivité sont effectuées par spectrométrie gamma Ge ou par radiochimie sur les cendres qui concentrent le maximum de radioactivité dans le plus faible volume. Par cette méthode des pertes sont possibles pour certains radionucléides ayant une basse température d'ébullition. D'après PANNETIER (1980) ce phénomène semble négligeable pour le césium ou le cobalt qui ont respectivement des températures d'ébullition de 690 et 2900° C.

Les valeurs concernant les prélèvements et les mesures de radioactivité sont introduites dans une base de données, gérée par ordinateur.

## 1-2 Etudes expérimentales en laboratoire

Les études de laboratoire consistent à introduire les radionucléides dans un compartiment du milieu et à suivre son transfert vers un ou plusieurs autres compartiments.

### 1-2-1 Transfert du $^{137}\text{Cs}$

Des expériences sont effectuées pour étudier le transfert du césium-137 entre cinq compartiments représentatifs d'un écosystème aquatique. Il s'agit de l'eau et du sédiment du Rhône, d'un poisson (la carpe) et de deux invertébrés qui entrent dans son régime alimentaire (les daphnies et les larves de chironomes). La méthode consiste à mettre en présence les compartiments deux à deux et à suivre le passage du radionucléide de l'un vers l'autre. Elle nécessite de réaliser dix expériences de durées comprises entre 10 et 90 jours. Le césium-137 est introduit dans les bacs expérimentaux sous forme de chlorure qui ne se modifie pas au cours des expériences. Des mesures régulières de radioactivité des différents compartiments permettent de calculer l'évolution des rapports de concentration en fonction du temps. Les protocoles détaillés de ces différentes expériences sont décrits dans une publication antérieure (LAMBRECHTS, 1984).

### 1-2-2 Contamination de la carpe par le $^{60}\text{Co}$

L'étude est réalisée sur trois lots homogènes de 10 carpes juvéniles d'un poids initial d'environ 1 g. Les poissons du premier lot sont placés dans des bacs individuels et reçoivent de la nourriture marquée (tableau 1). Les individus ayant été habitués à venir prendre leur nourriture aussitôt après qu'elle leur ait été donnée, il n'y a aucun passage de  $^{60}\text{Co}$  dans l'eau. Les individus des deux autres lots sont maintenus dans l'un des compartiments délimités par des cloisons perforées dans un bac contenant 270 litres d'eau contaminée à raison de  $6,8.10^4 \text{ Bq.l}^{-1}$ . Un des deux groupes reçoit de la nourriture contaminée

identique à celle fournie aux individus isolés. Les poissons reçoivent, 5 jours par semaine, une ration journalière, scindée en 4 repas, de nourriture constituée d'une pâte homogène composée de 20 % d'aliment industriel et de 80 % de tissu mou de limnées contaminées ou non.

Immédiatement après la phase d'accumulation, afin de suivre l'élimination du radionucléide, chaque lot de poissons est transféré dans un bac contenant de l'eau inactive renouvelée tous les jours et reçoit de la nourriture non marquée. Dans toutes les expériences l'eau est maintenue à une température constante de  $20 \pm 1^\circ \text{C}$ . Les cinétiques d'accumulation et d'élimination du  $^{60}\text{Co}$  sont suivies par des mesures régulières de la radioactivité des poissons qui, pour cette opération, subissent une anesthésie légère.

Tableau 1. - Paramètres expérimentaux relatifs à la nourriture ingérée par les poissons au cours de la phase d'accumulation du  $^{60}\text{Co}$ .

Table 1. - Experimental parameters related to the food ingested by the fish during the  $^{60}\text{Co}$  accumulation phase.

Paramètres	Vecteur de l'accumulation du Cobalt-60		
	Nourriture	Eau	Eau + nourriture
Nombre total de rations journalières (5/semaine)	45	45	45
Poids total (g*)	$4,73 \pm 0,39$	$5,19 \pm 0,34$	$5,14 \pm 0,43$
Taux de distribution journalier (% de la masse des poissons)	$6,6 \pm 0,5$	$6,4 \pm 0,4$	$6,2 \pm 0,5$
$^{60}\text{Co}$ total absorbé (Bq*)	$42320 \pm 3655$	-	$43741 \pm 3628$
Cobalt total absorbé ( $\mu\text{g}$ *)	$0,603 \pm 0,049$	$0,658 \pm 0,044$	$0,654 \pm 0,059$

\* Les intervalles de confiance sont calculés d'après la formule  $t.s/\sqrt{n}$  dans laquelle "t" est la variable de Student pour 95 % de probabilité, "s" la déviation standard estimée et "n" le nombre de données qui est ici de 10 (10 individus dans chaque lot).

## 2 - RÉSULTATS ET DISCUSSION

### 2-1 Constat radioécologique du Rhône

La radioactivité naturelle, due au  $^{40}\text{K}$  et aux familles de l'uranium-238 et du thorium-232, est stable sur l'ensemble du fleuve. Elle est de l'ordre de  $1 \text{ Bq.l}^{-1}$  d'eau, de  $2250 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec de sédiment, de  $1700 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec de végétaux aquatiques immergés et de  $110 \text{ Bq.kg}^{-1}$  frais de poissons (FOULQUIER *et al.*, 1987).

L'impact des retombées des explosions atmosphériques peut s'évaluer dans le tronçon du fleuve situé entre le lac Léman et la Centrale du Bugey ; il se caractérise essentiellement par la présence de  $^{137}\text{Cs}$  dans tous les compartiments du fleuve. Avant mai 1986 il y avait entre 0,2 et 1  $\text{mBq.l}^{-1}$  d'eau filtrée, 3 et 21  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec de sédiment, 3 et 9  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec de végétaux immergés, < 5  $\text{Bq.kg}^{-1}$  frais pour les poissons.

L'impact d'une centrale électronucléaire peut se mesurer, par exemple, à l'aval du Bugey dont les effluents liquides contiennent essentiellement les Cobalt-58 et 60, les Césium-134 et 137 qui représentent plus de 50 % de la radioactivité hors tritium (BIDARD et BARDIN, 1987). Le tableau 2 donne les valeurs trouvées dans les principaux compartiments du milieu.

Tableau 2. - Concentrations en radiocésium et radiocobalt avant mai 1986 dans différents compartiments d'une station aval du Bugey.

Table 2. - Radiocesium and radiocobalt concentrations before may 1986, in different compartments of a sampling station downstream from the Bugey.

Compartiments	Radionucléides			
	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{58}\text{Co}$	$^{60}\text{Co}$
Sédiments ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ sec)	1,2 à 1,6 (2/5)	3 à 34 (5/5)	2 à 7 (2/5)	2,8 à 3,4 (2/5)
Végétaux immergés ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ sec)	1,7 (1/4)	5 à 20 (4/4)	107 à 2400 (3/4)	2 à 460 (4/4)
Poissons ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ frais)	0,04 à 1,9 (56/150)	0,02 à 168 (150/150)	0,1 à 210 (26/150)	0,1 à 42 (45/150)

( ) Nombre de valeurs significatives/nombre de mesures effectuées.

Le nuage radioactif provenant de Tchernobyl a survolé l'est de la France pendant les premiers jours de mai 1986. Les prélèvements effectués de mai 1986 à août 1987 permettent d'évaluer l'impact des retombées comme le montrent les tableaux 3 et 4 (LAMBRECHTS *et al.*, 1988). On constate en particulier l'augmentation des césium 134 et 137 et la présence des ruthénium 103 et 106. Après un pic en mai-juin 1986 on assiste à une décroissance des niveaux de radioactivité plus rapidement chez les végétaux que chez les poissons ou le sédiment. Le  $^{103}\text{Ru}$  disparaît dès la fin de l'été 1986. Pour les poissons, les périodes biologiques calculées à partir des données de terrain sont de 2,7 et 173 jours pour le  $^{134}\text{Cs}$  et de 5,1 et 346 jours pour le  $^{137}\text{Cs}$ . Il est alors intéressant de confronter ces données de terrain aux résultats expérimentaux obtenus au laboratoire avec le Césium-137.



Tableau 3. - Impact de l'accident de Tchernobyl sur la partie du Rhône non influencée par les rejets liquides des centrales nucléaires (amont du Bugey).

Table 3. - Impact of the Tchernobyl accident on the zone of Rhône not influenced by the liquid wastes of the nuclear power stations (upstream from Bugey).

Compartiments Radionucléides	Périodes des prélèvements		
	Avant mai 1986	Mai/juillet 1986	Juillet 1986/ août 1987
Eau (mBq.l <sup>-1</sup> )	$^{134}\text{Cs}$	-	8 (1)
	$^{137}\text{Cs}$	0,8 ± 2 (3)	70 (1)
	$^{103}\text{Ru}$	-	-
	$^{106}\text{Ru+Rh}$	-	-
Sédiment (Bq.kg <sup>-1</sup> .sec)	$^{134}\text{Cs}$	-	76 ± 48 (8)
	$^{137}\text{Cs}$	10 ± 9 (5)	150 ± 90 (8)
	$^{103}\text{Ru}$	-	66 ± 58 (7)
	$^{106}\text{Ru+Rh}$	-	58 ± 58 (8)
Bryophytes (Bq.kg <sup>-1</sup> .sec)	$^{134}\text{Cs}$	-	555 ± 288 (4)
	$^{137}\text{Cs}$	5,5 ± 5,1 (3)	1186 ± 555 (4)
	$^{103}\text{Ru}$	-	1201 ± 1011 (4)
	$^{106}\text{Ru+Rh}$	-	1017 ± 399 (4)
Phanérogames immergées (Bq.kg <sup>-1</sup> .sec)	$^{134}\text{Cs}$	-	5 à 192 (3)
	$^{137}\text{Cs}$	5,7 ± 3 (5)	30 à 390 (3)
	$^{103}\text{Ru}$	-	80 à 594 (3)
	$^{106}\text{Ru+Rh}$	-	90 à 385 (3)
Poissons frais (Bq.kg <sup>-1</sup> )	$^{134}\text{Cs}$	-	5 ± 2 (21)
	$^{137}\text{Cs}$	0,4 ± 0,1 (103)	10 ± 4 (21)
	$^{103}\text{Ru}$	-	2 ± 1 (8)
	$^{106}\text{Ru+Rh}$	-	6,7 (1)

Les moyennes sont données avec leur intervalle de confiance à 95 % de probabilités ; entre parenthèses est indiqué le nombre de fois où le radioélément est détecté de façon significative.

Tableau 4. - Impact de l'accident de Tchernobyl sur la partie du Rhône influencée par les effluents des centrales nucléaires (de l'aval du Bugey à l'amont de Marcoule).

Table 4. - Tchernobyl accident impact on the zone of the Rhône influenced by the liquid wastes of the power stations (from downstream of Bugey to upstream of Marcoule).

Compartiments Radionucléides	Périodes de prélèvements			
	Avant mai 1986	Mai/juillet 1986	Juillet 1986/ août 1987	
Eau (mBq.l <sup>-1</sup> )	<sup>134</sup> Cs	-	7 à 11 (3)	-
	<sup>137</sup> Cs	0,2 (1)	135 ± 48 (3)	25 ± 15 (4)
	<sup>103</sup> Ru	-	90 à 260 (3)	-
	<sup>106</sup> Ru+Rh	-	-	220 (1)
Sédiment (Bq.kg <sup>-1</sup> sec)	<sup>134</sup> Cs	1,9 ± 2,3 (3)	81 ± 38 (14)	32 ± 15 (11)
	<sup>137</sup> Cs	14 ± 7 (15)	174 ± 73 (15)	93 ± 45 (11)
	<sup>103</sup> Ru	-	173 ± 113 (15)	-
	<sup>106</sup> Ru+Rh	-	144 ± 71 (15)	27 ± 22 (11)
Bryophytes (Bq.kg <sup>-1</sup> sec)	<sup>134</sup> Cs	9 (1)	255 ± 114 (4)	93 ± 51 (14)
	<sup>137</sup> Cs	18 (1)	560 ± 354 (4)	263 ± 134 (14)
	<sup>103</sup> Ru	-	850 ± 874 (4)	8 (1)
	<sup>106</sup> Ru+Rh	-	757 ± 581 (4)	164 ± 111 (13)
Phanérogames immergées (Bq.kg <sup>-1</sup> sec)	<sup>134</sup> Cs	1,7 (1)	45 ± 21 (21)	5 1 (23)
	<sup>137</sup> Cs	5 ± 2 (26)	132 ± 94 (21)	15 4 (23)
	<sup>103</sup> Ru	11 (1)	687 ± 493 (20)	-
	<sup>106</sup> Ru+Rh	71 (1)	668 ± 424 (12)	3,7±5,4 (23)
Poissons (Bq.kg <sup>-1</sup> frais)	<sup>134</sup> Cs	0,4 ± 0,1 (78)	4,2 ± 1,0 (49)	1,6±0,2 (91)
	<sup>137</sup> Cs	1,08 ± 1,02 (32)	8,9 ± 2,2 (49)	4,4 ± 0,5 (96)
	<sup>103</sup> Ru	-	3,3 ± 1,2 (96)	1 (1)
	<sup>106</sup> Ru+Rh	4,6 ± 8,4 (3)	-	-

Les moyennes sont données avec leur intervalle de confiance à 95 % de probabilité ; entre parenthèses est indiqué le nombre de fois où le radioélément est détecté de façon significative.

## 2-2 Etude expérimentale du transfert du $^{137}\text{Cs}$

Le transfert du  $^{137}\text{Cs}$  de l'eau vers le sédiment est très rapide ; 99,7 % de la radioactivité introduite sont fixés dans le sédiment dès les premières heures. Inversement la désorption est inférieure à 2 %.

Dans l'expérience de transfert de l'eau vers les larves de chironomes on constate une augmentation de la radioactivité des organismes (figure 3). A l'inverse dans l'expérience de transfert du sédiment aux larves leur radioactivité semble indépendante du temps de contact avec le sédiment contaminé ; la concentration des chironomes en césium-137 est maximale dès le premier jour. Il est probable qu'elle corresponde à la radioactivité du sédiment transitant dans le tractus intestinal. D'après les travaux de GERKING *et al.* (1976) 10 % de la radioactivité des larves seraient dûs au transfert direct à partir de l'eau et 90 % aux transferts à partir du sédiment. Les données issues de nos propres expériences aboutissent à des valeurs respectivement égales à 7 et 93 %.

Le transfert du  $^{137}\text{Cs}$  de l'eau aux carpes est régulier et il n'apparaît pas d'équilibre après 63 jours (figure 3). Le facteur de concentration est alors inférieur à 5. Le transfert du radiocésium du sédiment vers les carpes en présence d'eau inactive a été étudié pendant 42 jours. La radioactivité des carpes augmente pendant toute la durée de l'expérience mais le facteur de transfert est extrêmement faible ( $3,6 \cdot 10^{-3}$ ). Cependant, du fait de l'importance du transfert eau-sédiment, la radioactivité de ce dernier est toujours forte et il suffit que le poisson ingère de faibles quantités de particules pour que sa concentration en  $^{137}\text{Cs}$  soit significative.

Le transfert du radiocésium des daphnies contaminées par l'eau aux carpes donne un facteur de rétention (rapport de la teneur en  $^{137}\text{Cs}$  des poissons sur celle de la nourriture) de 0,03 (figure 3).

Le transfert vers les carpes à partir des larves de chironomes donne un facteur de rétention de 0,13.

Une expérience a permis de montrer qu'il y a cumul des voies de transfert du  $^{137}\text{Cs}$  vers les carpes. Le transfert par l'eau est responsable de 4 % de la radioactivité des poissons, le transfert par le sédiment de 45 % et le transfert par les chironomes de 51 %. Ceci montre l'importance du rôle de la nourriture dans l'accumulation du radiocésium par les poissons.

La décroissance de la radioactivité des carpes mises en décontamination dans de l'eau inactive pendant 86 jours et nourries avec des chironomes non contaminés correspond à deux périodes biologiques de 5 et 70 jours. La période longue est plus faible que celle trouvée *in situ* après l'accident de Tchernobyl ou celle donnée par KEVERN (1964) qui est de 200 jours.

Comme les différentes voies de transfert se cumulent, on peut regrouper dans un modèle mathématique les équations de cinétique (figure 2). A l'aide de ce modèle, connaissant la radioactivité de l'eau ou du sédiment, on peut alors calculer la contamination théorique des carpes en fonction du temps, en tenant compte de leur croissance pondérale et de la quantité de nourriture ingérée.

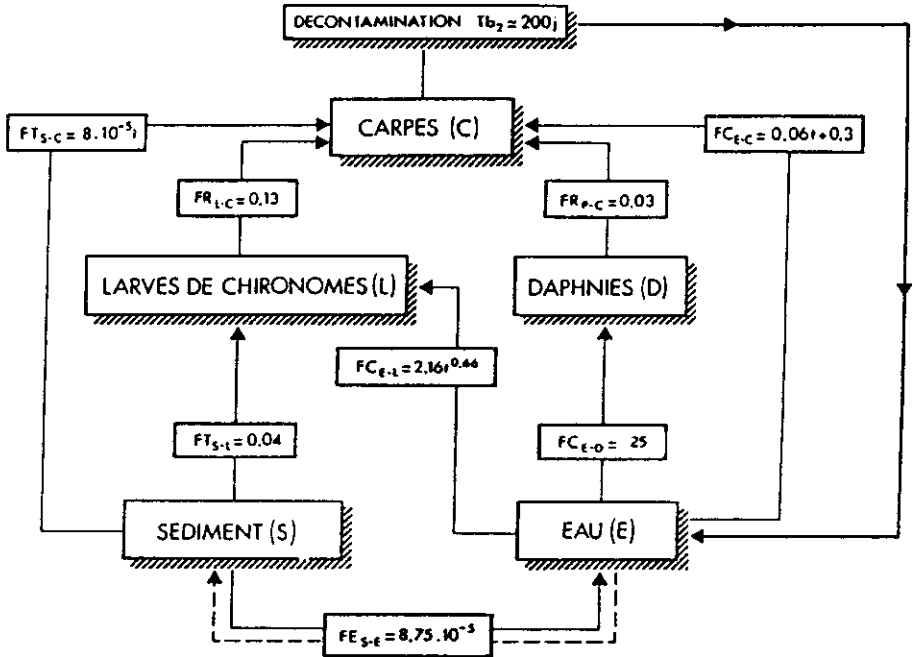


Figure 2. - Modèle expérimental de transfert du  $^{137}\text{Cs}$  dans les compartiments d'un écosystème d'eau douce simplifié.

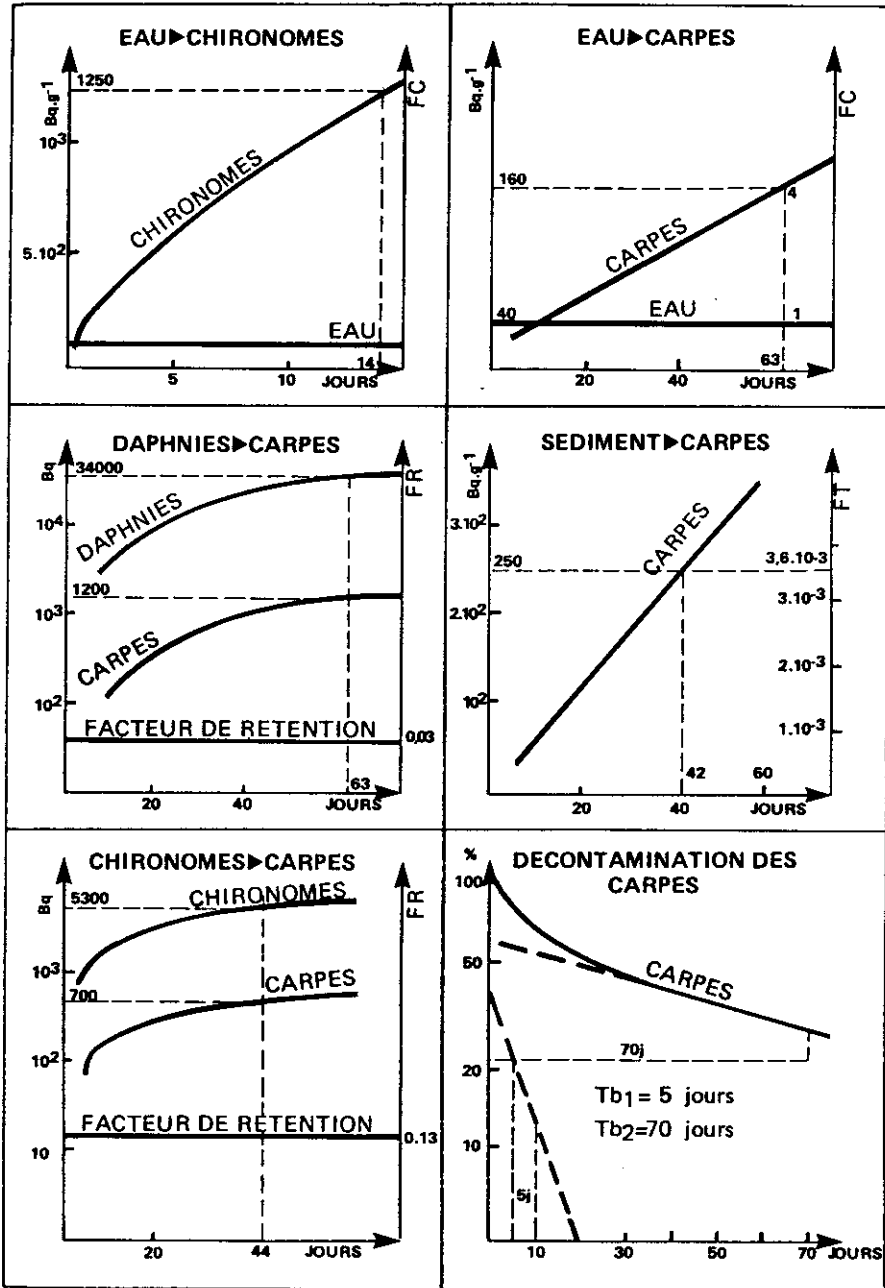
Figure 2. - Experimental  $^{137}\text{Cs}$  transfer model in the compartments of a simplified freshwater ecosystem.

Ainsi, ce modèle de calcul appliqué à des carpes juvéniles (conditions de notre expérience) donne après 180 jours un facteur de concentration global d'environ 1050 ; près de 90 % de la radioactivité des poissons seraient alors dûs à la nourriture. Le même modèle appliqué pour une carpe de 3 ans donne un facteur de concentration de 500. Si on considère les conditions observées sur le terrain (saisons, variations cycliques du régime alimentaire, etc...) on obtient pour des carpes vivant pendant 5 ans dans le Rhône, un facteur de concentration fluctuant entre 200 et 350.

Avec une activité moyenne de l'eau de  $1 \text{ mBq.l}^{-1}$  le modèle donne pour les poissons une valeur de 0,2 à  $0,35 \text{ Bq.kg}^{-1}$  frais, ce qui est de l'ordre de grandeur des valeurs trouvées dans le Rhône avant mai 1986.

### 2-3 Etude expérimentale du transfert du $^{60}\text{Co}$

Au cours de la phase d'accumulation la masse moyenne des poissons des 3 lots a augmenté exponentiellement et le gain relatif a été de 52 à 69 % (tableau 5). L'ingestion de nourriture contaminée par les poissons du premier lot se traduit par une accumulation de  $^{60}\text{Co}$  relativement limité (figure 4) malgré la quantité importante de radionucléide ingérée à chaque repas. Le facteur de transfert trophique reste à peu près constant, de l'ordre de  $10^{-2}$ . Le facteur de rétention décroît dans



FC = Facteur de concentration (concentration poisson/concentration eau)  
 FT = Facteur de transfert (concentration poisson/concentration sédiment)  
 FR = Facteur de rétention (teneur poisson/teneur cumulée nourriture)

Figure 3.- Cinétique des principaux transferts expérimentaux du  $^{137}\text{Cs}$ .

Figure 3. - Kinetics of the main experimental  $^{137}\text{Cs}$  transfers.

le temps et après 63 jours il est d'environ  $3.10^{-3}$ . Ces valeurs sont inférieures à celles citées dans les rares travaux publiés sur l'absorption par voie trophique du  $^{60}\text{Co}$  par les poissons, au cours desquels la quantité de nourriture fournie est nettement plus faible (PENTREATH, 1973 ; KIMURA et ICHIKAWA, 1972 ; AMIARD-TRIQUET, 1979).

Tableau 5. - Evolution de la masse des poissons au cours de la phase d'accumulation du  $^{60}\text{Co}$ .

Table 5. - Development of the fish bodymass during the  $^{60}\text{Co}$  accumulation phase.

Temps (jours)	Vecteur de l'accumulation du $^{60}\text{Co}$		
	Nourriture	Eau	Eau + nourriture
7	0,96 ± 0,10	1,05 ± 0,09	1,02 ± 0,15
14	0,97 ± 0,10	1,09 ± 0,09	1,05 ± 0,16
21	0,99 ± 0,12	1,12 ± 0,08	1,12 ± 0,15
28	1,04 ± 0,11	1,20 ± 0,11	1,16 ± 0,15
35	1,12 ± 0,12	1,29 ± 0,15	1,26 ± 0,16
42	1,19 ± 0,16	1,42 ± 0,14	1,38 ± 0,17
49	1,29 ± 0,16	1,49 ± 0,18	1,48 ± 0,17
56	1,34 ± 0,18	1,59 ± 0,16	1,58 ± 0,19
63	1,46 ± 0,22	1,76 ± 0,24	1,72 ± 0,19
Equation de l'évolution de la masse	M = 0,86.e <sup>0,008t</sup> (r <sup>2</sup> = 0,96)	M = 0,95.e <sup>0,009t</sup> (r <sup>2</sup> = 0,98)	M = 0,92.e <sup>0,009t</sup> (r <sup>2</sup> = 0,98)

Les intervalles de confiance sont calculés d'après la formule  $t.s/\sqrt{n}$  dans laquelle "t" est la variable de Student pour 95 % de probabilité, "s" la déviation standard estimée et "n" le nombre de données qui est ici de 10 (10 individus dans chaque lot).

Pour les deux lots maintenus dans le bac contenant l'eau contaminée, l'accumulation du  $^{60}\text{Co}$  atteint un niveau nettement supérieur à celui observé pour les poissons contaminés par la nourriture seule (figure 4). Le facteur de concentration à partir de l'eau est de l'ordre de 10. Les valeurs de la concentration du radiocobalt dans les poissons indiquent très nettement que l'eau est le vecteur essentiel de la contamination. La cinétique d'accumulation du  $^{60}\text{Co}$  par les carpes est similaire pour les trois lots. Les valeurs successives de la concentration du radionucléide correspondent à un modèle exponentiel fondé sur l'existence, dans les organismes, de plusieurs compartiments caractérisés par des vitesses différentes de flux entrant et sortant d'un élément considéré (GOLDS-TEIN et ELWOOD, 1971 ; ADYAMA et INOUE, 1973 ; SACHER, 1987). Une extrapolation à partir de ce modèle permet de calculer les valeurs maximales des niveaux de contamination et le temps nécessaire à l'établissement de l'état d'équilibre (figure 4). Cette extrapolation montre que la

radioactivité maximale est rapidement atteinte pour les trois lots d'individus, ce qui est l'indice d'un taux élevé de renouvellement du cobalt. Les différences entre les concentrations mettent en évidence l'addition du  $^{60}\text{Co}$  accumulé à partir de l'eau et à partir de la nourriture, ce qui constitue un phénomène particulièrement important du point de vue radioécologique. Ce cumul et les écarts entre les niveaux maximaux de radioactivité suggèrent que l'accumulation du radiocobalt par les carpes ne concernerait pas les mêmes tissus et organes selon la voie d'absorption. Le métabolisme du radionucléide absorbé respectivement par les branchies et au niveau du tractus digestif serait différent et le pool de cobalt échangé dans les deux cas ne serait pas le même. Cette hypothèse rejoint celle émise par BERTRAM et BROOKS (1986) qui ont suggéré l'existence de deux compartiments fonctionnels pour expliquer l'accumulation, à partir de l'eau et à partir de la nourriture, du sélénium par *Pimephales promelas*. Les cinétiques d'élimination du  $^{60}\text{Co}$  par les carpes des trois lots tendent à confirmer une telle hypothèse. En effet, après l'absorption du radionucléide à partir de l'eau, la période biologique longue est nettement plus élevée ( $T_{b_2} = 87$  jours) que dans le cas de l'absorption à partir de la nourriture ( $T_{b_2} = 35$  jours).

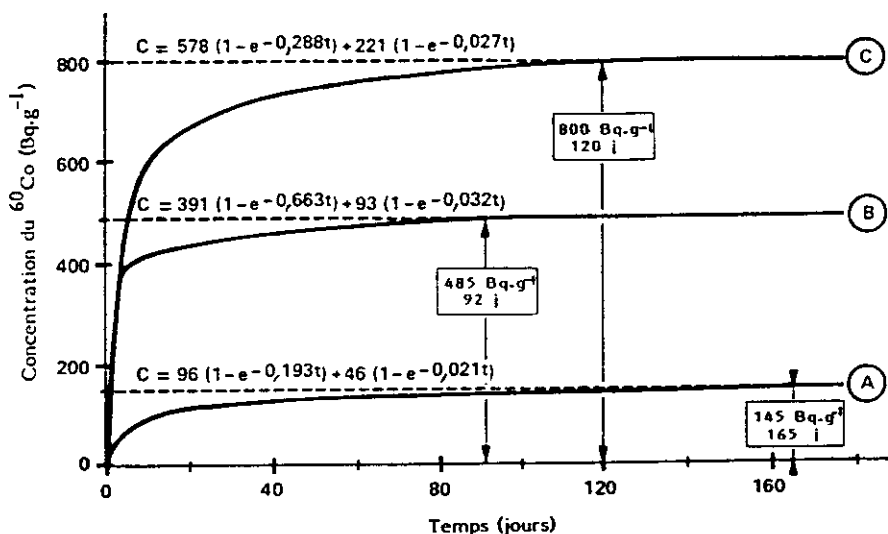


Figure 4. - Evolution de la concentration du  $^{60}\text{Co}$  dans les poissons des 3 lots, extrapolée des valeurs obtenues pendant l'étude expérimentale de l'accumulation : (A) accumulation à partir de la nourriture, (B) accumulation à partir de l'eau, (C) contamination simultanée par les deux voies.

Figure 4. - Development of the  $^{60}\text{Co}$  concentration in fish of the three treatment groups extrapolated to values obtained during the experimental, accumulation study : (A) accumulation from food, (B) accumulation from water, (C) accumulation from both sources.

En ce qui concerne l'évaluation de la contribution respective des deux voies dans l'accumulation du radiocobalt par les carpes, il apparaît que la concentration du  $^{60}\text{Co}$  dans les poissons contaminés simul-

tanément à partir de l'eau et de la nourriture est supérieure à la somme des concentrations mesurées dans les poissons des deux autres lots (figure 4). D'un point de vue physiologique l'hypothèse d'un effet synergique des deux voies ne peut être retenue et en conséquence, cette différence a été considérée comme un artéfact expérimental sans signification. Toutefois ce fait conduit à une triple évaluation de la contribution de l'eau et de la nourriture. Un premier couple de valeurs est tiré de l'addition des concentrations résultant de l'accumulation par les deux voies séparément. Les deux autres couples sont calculés d'après les concentrations dues à chacune des deux voies et de celle provenant de la contamination par les deux voies simultanément. Cette démarche constitue une synthèse des diverses méthodes utilisées dans ce type de détermination qui est généralement tirée de la comparaison de seulement deux des trois possibilités d'absorption du polluant (WILLIAM et GIEZY, 1979 ; AMIARD-TRIQUET et SAAS, 1979 ; SUZUKI *et al.*, 1979 ; WILLIS et SUNDA, 1984 ; BERTRAM et BROOKS, 1986). Cette évaluation met en évidence une très large prédominance de l'eau dont la contribution peut être évaluée à 80 %, valeur qui ne subit pas d'évolution significative au cours des 63 jours de l'expérience.

---

## CONCLUSION

---

L'étude radioécologique du Rhône a permis d'évaluer l'impact des différents termes sources. Les deux radionucléides qui prédominent dans les effluents liquides sont également ceux que l'on retrouve le plus souvent dans les compartiments de l'écosystème aquatique, mais, paradoxalement, les radiocobalts qui présentent la radioactivité la plus importante dans les effluents se retrouvent en quantité moindre dans les poissons. Malgré les difficultés inhérentes à l'extrapolation des données expérimentales au milieu naturel, les études en laboratoire sont indispensables à une bonne interprétation d'un tel constat. Lors du rejet des effluents, le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{60}\text{Co}$  restent peu de temps dans l'eau, si bien que la durée du contact avec les organismes vivants est relativement limitée. En conséquence, pour le radiocobalt, l'eau étant le vecteur essentiel dans le transfert aux poissons, l'accumulation reste à un niveau faible, le facteur de concentration étant peu élevé. Au contraire pour le  $^{137}\text{Cs}$  la voie trophique étant prédominante, l'accumulation sera continue en raison de l'ingestion chronique des proies contaminées.

Une autre donnée radioécologique intéressante peut être tirée de la mise en évidence de la nette prédominance du vecteur eau dans le transfert du  $^{60}\text{Co}$ . En effet, dans le cas d'une pollution accidentelle d'un cours d'eau par ce radionucléide, la radioactivité des poissons mesurée après le passage du flux d'eau contaminée correspondra à une accumulation qui pourra être considérée comme maximale. La contamination à partir de la nourriture étant faible il n'y aura pas d'effet retardé important dans les jours suivant la pollution de l'eau.

Pour le  $^{137}\text{Cs}$  la démarche expérimentale et le modèle mathématique qui en est résulté ont permis d'évaluer un facteur de concentration global de l'ordre de 300 qui est dans la fourchette des valeurs mesurées *in situ*. Même dans le cas d'une concentration relativement faible dans les effluents liquides le  $^{137}\text{Cs}$  sera visible dans les poissons. Sa période physique de 30 ans, sa faculté à se fixer sur les particules sédimen-



taires contribuent à ce que la contamination des poissons devienne un phénomène durable d'autant que les termes sources cumulent leurs effets.

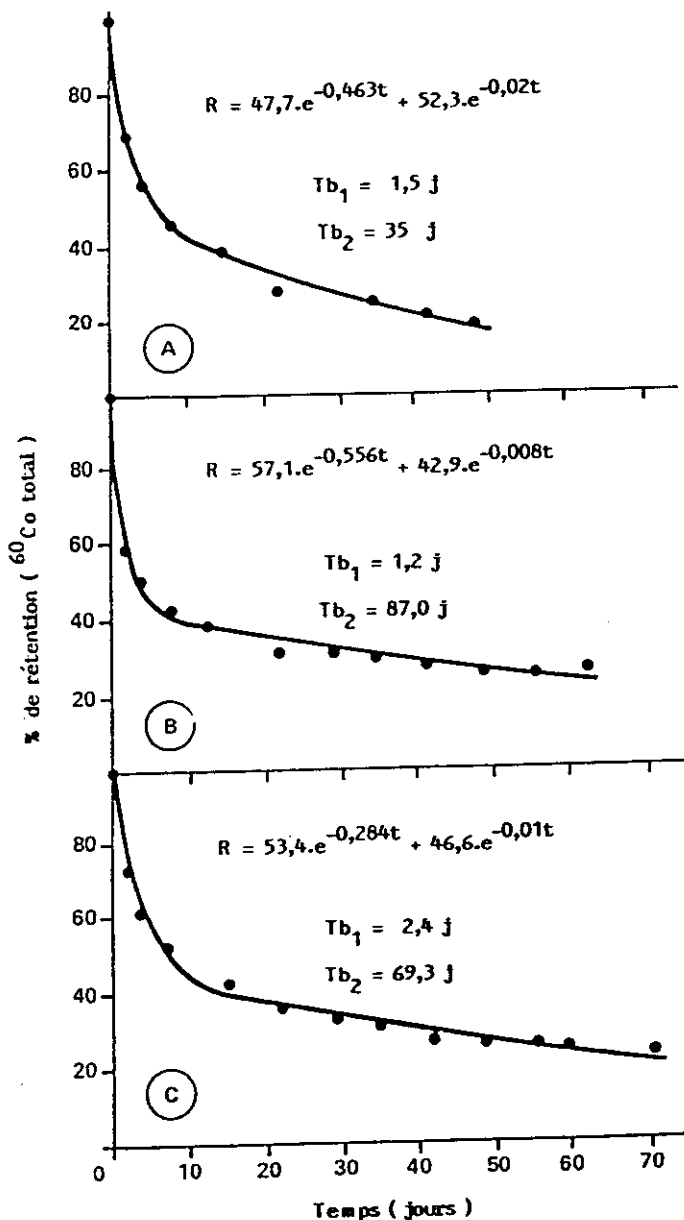


Figure 5. - Etude expérimentale de l'élimination du  $^{60}\text{Co}$  par *Cyprinus carpio* après sa bioaccumulation à partir de la nourriture (A), à partir de l'eau (B) et à partir des deux voies simultanément (C).

Figure 5. - Experimental study of the  $^{60}\text{Co}$  depuration from *Cyprinus carpio* after bioaccumulation from food (A), from water (B) and from both sources (C).

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AMIARD-TRIQUET C. (1979). Modalités de la contamination de deux chaînes trophiques dulçaquicoles par le cobalt-60. III : Contamination des organismes par l'intermédiaire de la nourriture. *Water, Air, and Soil Pollut.*, 12 : 155-170.
- AMIARD-TRIQUET C., SAAS A. (1979). Modalités de la contamination de deux chaînes trophiques dulçaquicoles par le cobalt 60. II : Contamination simultanée des organismes par l'eau et la nourriture. *Water, Air, and Soil Pollut.*, 12 : 141-153.
- ADYAMA I., INOUE Y. (1973). Estimation and evaluation of radioactive contamination through a food web in an aquatic ecosystem. An application of the compartment model to transfer of radioactive substance through a food chain. *J. Rad. Res.*, 14 : 375-381.
- BAUDIN J.P., FRITSCH A.F. (1988). Influence de la température sur l'accumulation par la voie directe du  $^{60}\text{Co}$  chez un poisson dulçaquicole. *Revue des Sciences de l'Eau*, 1 (4) : 385-400.
- BERTRAM P.E., BROOKS A. (1986). Kinetics of accumulation of selenium from food and water by fathead minnows. *Wat. Res.*, 20 : 877-884.
- BIDARD F., BARDIN B. (1987). Exploitation des centrales nucléaires et environnement. Le secteur eau. *Rev. Gén. Nucl.*, 1 : 24-32.
- FOULQUIER L., DESCAMPS B., BAUDIN-JAULENT Y. (1985). Mesure et interprétation des teneurs en radionucléides des poissons du Haut-Rhône français. *Verh. Intern. Verein. Limnol.*, 22 : 2470-2475.
- FOULQUIER L., LAMBRECHTS A., PALLY M. (1987). Impact radioécologique d'une usine de retraitement de combustibles nucléaires sur un fleuve : le Rhône. *Proc. Intern. Conf. on nuclear fuel reprocessing and waste management. Paris, 23-27 august 1987* : 1063-1070.
- GERKING S.D., BERG A., GERARD P. (1976). Rate of sediment intake by midge larvae (*Chironomus plumosus*-diptera) using a  $^{134}\text{Cs}$  tracer. In : edited by C.E. Cushing, *Radioecology and energy resources*, Dowdon, Hutchinson and Ross Inc., Stroudsburg, Pennsylvania : 126-135.
- GOLDSTEIN R.A., ELWOOD J.W. (1971). A two-compartment, three parameters model for the comparison absorption and retention of ingested elements by animals. *Ecology*, 52 : 935-939.
- KEVERN N.R., GRIFFITH N.A., GRIZZARD T. (1964). Biological half-life of  $^{134}\text{Cs}$  in carp. *ORNL 3627* : 101-102.
- KIMURA K., ICHIKAWA R. (1972). Accumulation and retention of ingested cobalt-60 by the common carp. *Bull. Jap. Soc. Sci. Fish.*, 38 : 1097-1130.
- LAMBRECHTS A. (1984). *Essai de modélisation du transfert du césium-137 dans les compartiments d'un écosystème d'eau douce simplifié*. Thèse Université Univ. Aix-Marseille I : 191 p.
- LAMBRECHTS A., FOULQUIER L. (1987). Radioecology of the Rhône basin : data on the fish of the Rhône (1974-1984). *J. Environ. Radioact.*, 5 : 105-121.
- LAMBRECHTS A., FOULQUIER L., PALLY M. (1988). Etude comparée de l'impact radioécologique des installations nucléaires et de l'accident de Tchernobyl sur le fleuve Rhône. *IVème Symposium International de Radioécologie de Cadarache. Impact des accidents d'origine nucléaire sur l'environnement. 14-18 mars 1988, Tome 1* : C39-C50.
- MAUBERT H., PICAT P. (1982). Appareil de prélèvement des eaux douces en vue de la mesure radioactive. Note CEA-N-2205 : 5 p.
- PANNETIER R. (1980). *Vademecum du technicien nucléaire*. SCF du Bastet Ed. 91300 Massy.
- PENTREATH R.J. (1973). The accumulation and retention of  $^{55}\text{Fe}$  and  $^{58}\text{Co}$  by the plaice. *Pleuronectes platessa*. *J. Exp. Mar. Biol. Ecol.*, 12 : 315-326.
- SACHER M. (1987). *Etude du transfert de cinq radionucléides - Cr-51, Sr-85, Cs-137, Mn-54, Co-60 - à l'huître Crassostrea gigas Thunberg*. Thèse 3ème Cycle, Université Aix-Marseille II : 123 p.
- SUZUKI Y., NAKAHARA M., NAKAMURA R., UEDA T. (1979). Roles of food and sea water in the accumulation of radionuclides by marine fish. *Bull. Jap. Soc. Sci. Fish.*, 45 : 1409-1416.
- WILLIAMS D.R., GIESY J.P. (1978). Relative importance of food and water sources to cadmium uptake by *Gambusia affinis*. (Poeciliidae). *Environ. Res.*, 16 : 326-332.
- WILLIS J.N., SUNDA W.G. (1984). Relative contributions of food and water in accumulation of zinc by two species of marine fish. *Mar. Biol.*, 80 : 273-279.