

ANNALES DE L'ASSOCIATION BELGE DE RADIOPROTECTION

Transfert des radionucléides en écosystème fluvial.

Journée d'étude organisée à Mol le 19 juin 1986 par le groupe mixte CEA-CEN-CCE: "Radioécologie des eaux continentales".

VOL. 12, N° 2 - 3

2e - 3e trim. 1987

Driemaandelijkse
periodiek

Périodique
trimestriel

Transfert van radionucleiden in een stroomecosysteem.

Studiedag gehouden te Mol op 19 juni 1986 door de groep samengesteld door CEA-SCK-EEG: "Radioecologie van continentale wateren".

ANNALEN VAN DE BELGISCHE VERENIGING VOOR STRALINGSBESCHERMING

Hoofdredakteur

Dr M.H. FAES
Fazantendreef, 13
2850 Keerbergen

Rédacteur en chef

Redactiesecretariaat

Mme Cl. STIEVENART

Secrétaire de rédaction

14, rue Juliette Wytsmannstraat,
1050 Bruxelles - Brussel.

Publikatie van teksten in de Annalen gebeurt onder volledige verantwoordelijkheid van de auteurs.

Nadruk, zelfs gedeeltelijk uit deze teksten, mag enkel met schriftelijk toestemming van de auteurs en van de Redactie.

Les textes publiés dans les Annales le sont sous l'entière responsabilité des auteurs.

Toute reproduction, même partielle, ne se fera qu'avec l'autorisation écrite des auteurs et de la Rédaction.

TRANSFERT DES RADIONUCLEIDES EN ECOSYSTEME FLUVIAL
TRANSFER VAN RADIONUCLEIDEN IN EEN STROOMECOSYSTEEM

Mol (Belgium) 19.06.1986.

- J.R. MAISIN
Allocation de bienvenue aux participants 121
- C.M. VANDECASTEELE
Introduction 123 - 126
- J.P. DESCY
Etudes écologiques de la Meuse en relation avec les rejets
des centrales nucléaires 127 - 138
- A. GILLET, J.-C. MICHA
Biologie et radiocontamination de 3 espèces animales
(*Dreissena polymorpha* P., *Rutilus rutilus* (L.) et
Perca fluviatilis (L.) représentatives de différents
maillons trophiques de l'écosystème Meuse 139 - 156
- L. SOMBRE, S. CARRARO et C. MYTTENAERE
Contamination d'une algue verte d'eau douce (*Scenedesmus
obliquus*) par des radionucléides typiques des
rejets d'une centrale PWR : culture dans un turbidostat 157 - 170
- J.S. SMITZ, E. EVERBECQ, B. COMELIAU
Modélisation du transfert du Cs-137 de l'eau vers le
phytoplancton et simulation des expérimentations de
laboratoire 171 - 204
- L. SOMBRE, S. CARRARO et C. MYTTENAERE
Transfert du Cs-134 dans une chaîne alimentaire d'eau
douce simplifiée : eau - algue verte (*Scenedesmus
obliquus*) - mollusque filtreur (*Dreissena polymorpha*) 205 - 230
- L. FOULQUIER, J.P. BAUDIN et A. LAMBRECHTS
Etudes des phénomènes de bioconcentration des radio-
nucléides dans un écosystème fluvial 231 - 246
- Th. ZEEVAERT, G. FIEUW, R. KIRCHMANN, G. KOCH,
C.M. VANDECASTEELE
Assessment of the dose to man from the sediments of a
river receiving radioactive effluents released by a
waste treatment facility 247 - 286

ALLOCUTION DE BIENVENUE AUX PARTICIPANTS

par **J.R. MAISIN**

Chef du département de Biologie du C.E.N./S.C.K.

Au nom de la Direction Générale du C.E.N. je suis particulièrement heureux de vous souhaiter la bienvenue à Mol et en particulier dans le département de Biologie.

Les responsables du département de Biologie du C.E.N. ont toujours œuvré pour favoriser les contacts et la collaboration entre chercheurs des différents laboratoires. Les travaux de recherches réalisés en commun dans le cadre des activités du groupe "Radioécologie de la Meuse et du Rhône", travaux qui sont financés par la CCE, est un des meilleurs exemples des fruits qui peuvent apporter l'approche interdisciplinaire de problèmes complexes par différents laboratoires.

Le programme de cette journée me semble des plus intéressant et je vous souhaite plein succès pour vos travaux.

TRANSFERT DES RADIONUCLÉIDES EN ECOSYSTEME FLUVIAL

Journée d'Etude
Département de Biologie, CEN/SCK, Mol
19 juin 1986

C.M. VANDECASTEELE

INTRODUCTION

L'estimation et la prédiction des doses à la population résultant du rejet d'éléments radioactifs dans un écosystème fluvial nécessitent l'étude et la modélisation du transfert des radionucléides entre les différents compartiments du système.

Pour aborder ce problème complexe, un groupe pluridisciplinaire a été réuni, qui rassemble des scientifiques appartenant à diverses institutions belges parmi lesquelles l'Institut d'Hygiène et d'Epidémiologie (IHE), le Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire (CEN/SCK), des laboratoires universitaires belges, de Louvain-la-Neuve (UCL), de Liège (ULg) et des Facultés Notre-Dame de la Paix (FNDP), ainsi que la Centrale de Tihange 1 (SEMO). Ce groupe belge travaille en étroite collaboration avec le laboratoire de Radioécologie des Eaux Douces du CEN-CEA à Cadarache (France) qui possède une longue expérience de l'étude du comportement des radionucléides en écosystème fluvial et a développé récemment un modèle de transfert du césium dans le Rhône.

Historiquement, le groupe belge a été créé en 1976, lorsqu'a débuté le programme d'"Etude de l'impact des rejets d'une centrale du type PWR sur la biocénose dulcicole". L'objectif de ce programme était de caractériser et de quantifier les effets des modifications des caractéristiques physico-chimiques d'un cours d'eau liées aux rejets d'effluents d'une centrale nucléaire à eau pressurisée. Le site de la Centrale de Tihange avait été choisi parce qu'il se prêtait bien à une étude comparée des organismes vivant dans la Meuse en amont et en aval du point de rejet des effluents considérés. C'est en juillet 1977 que ce groupe connut son véritable essor grâce à deux contrats de recherche successifs avec la Commission des Communautés Européennes. Les résultats obtenus dans le cadre de ces deux contrats ont été décrits dans des rapports techniques annuels et synthétisés dans deux rapports d'activités publiés en juillet 1982 (1) et février 1985 (2).

A dater du 1er janvier 1985, un nouveau contrat a été signé entre le CEN/SCK, qui assure la coordination de la recherche, et la Commission des Communautés Européennes. L'objectif général de ce nouveau programme portant sur l'"Etude du comportement en écosystème fluvial des radioéléments rejetés par des installations nucléaires et de leur transfert au sein des chaînes alimentaires d'eau douce" est d'aboutir à une meilleure compréhension des paramètres de l'accumulation de radioéléments par les organismes vivants et d'appliquer des modèles expérimentaux aux transferts trophiques de façon à expliquer les mesures de terrain et les résultats de laboratoire. Pour atteindre ce but, il est nécessaire de vérifier et de compléter les données de terrain au moyen d'études expérimentales réalisées en conditions contrôlées. Le but ultime du programme est de développer des modèles généraux de transfert des radionucléides en écosystème d'eau douce. La collaboration entre les groupes belge et français s'est intensifiée depuis 1985 dans le cadre du programme coordonné, supporté par la CCE, visant à améliorer la compréhension des processus et voies de transfert des radionucléides en écosystème d'eau douce et à développer sur cette base des modèles généraux de transfert des radioéléments en système fluvial.

Le but poursuivi lors de l'organisation de la Journée d'Etude qui s'est tenue à Mol le 19 juin 1986, était de faire le point de 10 ans de travaux de recherche concernant le radioécologie de la Meuse et du Rhône. Six communications originales ont été présentées à cette occasion et sont publiées ci-après. Les organisateurs ont estimé qu'il serait également opportun d'inclure à la suite des communications présentées à Mol, un travail réalisé au CEN/SCK portant sur l'estimation du doses à la population résultant de la contamination des sédiments provenant d'une rivière recevant les effluents radioactifs d'une installation de traitement des déchets. Bien que n'ayant pas été présenté lors de cette réunion, ce travail s'inscrit parfaitement dans le thème de la journée d'Etude organisée à Mol et révèle une autre facette des travaux sur la radioécologie des systèmes fluviaux.

Références

- 1) "L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse : cinq années d'études in situ et d'approche expérimentale", H. De Clercq-Versele et R. Kirchmann, eds., BLG555, CEN/SCK (Mo1), 54 pp., 1982.
- 2) "L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse : études in situ et recherches expérimentales durant la période 1981-1984", R. Kirchmann, ed., BLG573, CEN/SCK (Mo1), 48 pp., 1985.

ETUDES ECOLOGIQUES DE LA MEUSE EN RELATION AVEC LES REJETS DES CENTRALES NUCLEAIRES

DESCY, J.-P.

Unité d'Ecologie des Eaux Douces

F.N.D.P.

61, rue de Bruxelles

B-5000 Namur (Belgium)

Résumé

La contribution constitue une synthèse de travaux réalisés depuis plus de 10 ans sur l'écologie et la radioécologie de la Meuse, en relation avec l'étude de l'impact des rejets de centrales nucléaires PWR (Belgique).

L'apport de plusieurs programmes d'études successifs est souligné et les progrès réalisés dans les connaissances et au niveau de la démarche des chercheurs sont mis en évidence. Enfin, un programme en cours, consacré à la radioécologie de deux bassins fluviaux, est décrit succinctement.

Mots-clés

Ecologie, radioécologie, Meuse, Rhône, études de terrain, études expérimentales, modélisation.

1. Introduction

La présente contribution constitue un résumé et un bilan des études réalisées dans la cadre d'un groupe pluridisciplinaire réunissant des scientifiques de différentes universités (Liège, Louvain-la-Neuve, Namur) et des représentants du Centre d'Etudes Nucléaires de Mol, du Ministère de la Santé Publique (IHE) et de la centrale nucléaire de Tihange.

Différents programmes d'études successifs ont été entrepris depuis 1977, avec comme thème majeur l'étude de l'impact des différents types de rejets d'une

centrale de type PWR.

Le terme "étude d'impact" est cependant, dans ce cas précis, assez impropre : en effet, il s'agit plutôt d'un programme de recherches axé sur différents thèmes - écologie et radioécologie d'un milieu fluvial - que d'une évaluation au sens strict. L'approche générale est, en fin de compte, principalement scientifique et vise à compléter les programmes de surveillance et de contrôle pour le développement de certaines techniques ou par l'approfondissement de divers problèmes.

Seuls les principaux volets et leurs résultats essentiels sont évoqués ci-après, en considérant successivement trois périodes correspondant aux programmes d'études successifs (subsidiés tous trois, au moins partiellement, par la C.C.E.). Diverses publications et rapports détaillés sont cités en bibliographie : ces ouvrages doivent être consultés pour une information plus exhaustive.

2. Description et apports des programmes d'étude

2.1. La période 1976-1980

Les premières préoccupations sont essentiellement d'ordre radioécologique. Il s'agit d'inventorier la contamination radioactive de la Meuse suite aux rejets de la centrale SENA à Chooz : les premières mesures sont réalisées dès 1965, les campagnes étant renouvelées régulièrement tous les trois ans, dans le cadre des programmes de surveillance IHE/CEN (Ministère de la Santé Publique + Centre d'études nucléaires de Mol).

On s'intéressera progressivement à divers compartiments de l'écosystème (eaux, sédiments, plantes aquatiques, invertébrés, poissons, ...), le but poursuivi étant double : d'une part, d'établir la relation entre les rejets et la contamination du fleuve et d'autre part, de sélectionner des bioindicateurs, c'est-à-dire des organismes susceptibles d'accumuler les radionucléides à un taux élevé, facilitant ainsi leur détection (Kirchmann et Lambinon, 1973; Lambinon et al, 1976).

Dans la suite, à partir de 1976 et de 1977 (programme financé par le Ministère de la Santé Publique et la C.C.E.), le groupe pluridisciplinaire qui s'est constitué va

s'intéresser à l'impact écologique et radioécologique de la centrale de Tihange 1 mise en activité fin 1975. Les directions principales sont les suivantes :

- Etudes écologiques : effet des rejets thermiques sur la biocénose de la Meuse et la qualité des eaux, en particulier au niveau des variables physico-chimiques, de la flore (algues, mousses, ...) et de la faune (invertébrés, poissons);

- Etudes expérimentales "in situ", sur le comportement d'animaux et de végétaux exposés dans les canaux d'amenée et de rejet de Tihange 1 ainsi que dans la Meuse; il s'agit de mettre en évidence les effets des rejets thermiques et chimiques (chlore injecté sous forme d'hypochlorite pour le "biofouling" des réfrigérants).

- Etudes expérimentales en laboratoire : une algue unicellulaire, *Scenedesmus acutus* (syn. *S. obliquus*) est utilisée pour étudier la fixation sur un microorganisme des radiocobalt (^{58}Co - ^{60}Co), des radiocésium (^{134}Cs - ^{137}Cs), du tritium, ainsi que d'autres radioisotopes présents dans l'effluent de Tihange 1. Les taux de fixation élevés facilitent la détection des éléments et mettent en évidence ceux qui sont susceptibles de se concentrer dans des composants de l'écosystème et dans des chaînes alimentaires aboutissant éventuellement à l'Homme. A cette époque, on considère surtout *Scenedesmus* comme un bon bioindicateur de la contamination potentielle de la biocénose aquatique.

Les résultats les plus significatifs de cette première période d'étude sont repris en détail in De Clercq-Versele & Kirchmann (1982). On peut néanmoins citer les faits les plus marquants :

- l'échauffement de 2 à 3° C des eaux de la Meuse peut entraîner un déficit de concentration en O_2 dissous dans l'eau du fleuve, particulièrement quand il est cumulé à d'autres pollutions venant de l'amont ou se manifestant en aval;

- il n'apparaît pas (ou peu) de modifications qualitatives de la faune et de la flore, mais bien des modifications quantitatives, liées à l'effet des rejets thermiques et chimiques; cet impact se révèle notamment au niveau de la biomasse algale (voir Descy et Mouvet, 1984) et au niveau de la croissance et de la reproduction de certains invertébrés et poissons;

- des études expérimentales démontrent un effet du chlore sur des végétaux (algues microscopiques et mousses aquatiques) sensible à partir de 0.5 à 1 mg/l de chlore total;

- enfin, divers résultats sont obtenus quant à l'accumulation de radionucléides par des organismes : contamination expérimentale de cultures de *Scenedesmus* par l'effluent de la centrale; fixation de ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs par des mousses aquatiques avec des facteurs de concentration de 10^3 à 10^5 ; pour la faune aquatique, fixation du ^{137}Cs surtout chez des poissons et du ^{60}Co et ^{54}Mn chez des mollusques (voir contribution de A. Gillet pour le détail de la radiocontamination des animaux).

2.2. La période 1981-1984

Cette phase des études, marquée notamment par la mise en service de Tihange 2 en mars 1983, comporte des approches similaires à la précédente (cfr. § 2.1.). Parmi les nombreux résultats obtenus au cours de l'approfondissement des travaux de recherche (voir Kirchmann, 1985), on peut retenir principalement les suivants :

- les effets de rejets sont assez marqués au niveau du phytoplancton (algues microscopiques en suspension dans l'eau = "producteurs primaires", situés à la base de l'édifice trophique); on constate une augmentation des biomasses et des taux de production en période printanière et une diminution en période estivale et automnale;

- des effets du chlore sont observés, expérimentalement, à faibles concentrations chez des algues planctoniques;

- pour la faune du fleuve, diverses modifications quantitatives des peuplements sont précisées; des études expérimentales établissent les températures létales de quelques invertébrés (larves d'insectes, crustacés, mollusques); enfin, des modifications de la croissance et de la reproduction sont mises en évidence chez deux espèces naturellement abondantes en Meuse (un crustacé, Asellus aquaticus et un poisson, l'ablette commune);

- en radioécologie, on poursuit régulièrement le suivi de la contamination de la Meuse, grâce à l'utilisation de bioindicateurs; les cinétiques de contamination et de décontamination de radioisotopes des Co, Cs, Tc, Mn et Fe sont établies pour l'algue *Scenedesmus acutus* ; la potentialité de fixation du tritium, par la même algue, à partir de molécules organiques tritiées (OBT = "organically bound tritium") est étudiée dans un circuit expérimental simulant un circuit primaire de centrale PWR (Bourdon et al., 1984).

2.3. Un bilan scientifique

Au terme de ces 7 années d'études centrées sur le site de Tihange (mais aussi, dans le cadre d'autres programmes, sur la portion du fleuve située en aval du site de Chooz), un premier bilan scientifique a pu être dressé. On peut notamment citer parmi les apports les plus significatifs :

- les progrès importants de la connaissance de la structure et du fonctionnement de l'écosystème aquatique la Meuse, qui est sans doute un des fleuves européens les mieux connus au point de vue écologique et biologique à l'heure actuelle; diverses publications et rapports scientifiques en témoignent de façon éloquente;

- la prise de conscience par les scientifiques de diverses disciplines, de la nécessité d'une approche globale de l'effet des différents types de rejets polluants, de centrales nucléaires ou d'autres sources (industries, agglomérations, ...);

- l'apport, très riche en enseignements, du couplage entre études expérimentales (in situ ou en laboratoire) et études de terrain proprement dites.

Enfin, d'une façon générale, apparaît clairement la nécessité de mener, parallèlement à la surveillance et au contrôle de routine, des programmes de recherche qui s'attaquent à la résolution de certains problèmes écologiques et radioécologiques.

2.4. La période 1985-1989

Le programme débuté en 1985, financé principalement par la C.C.E., s'intéresse exclusivement à la radioécologie de deux grands bassins fluviaux, celui du Rhône (France) et celui de la Meuse (France, Belgique, Pays-Bas). L'initialisation de l'étude part de deux idées majeures :

- d'une part, réunir les connaissances acquises sur les deux fleuves, au cours de plus de 10 années de surveillance orientée vers la radiocontamination des principaux compartiments (eau, sédiments et matières en suspension, végétaux, poissons, ...); dans ce cadre l'expérience du laboratoire d'Etude de la Pollution des Eaux du C.E.N. de Ladarache est bien sûr particulièrement précieuse;

- d'autre part, en s'appuyant à la fois sur les études écologiques et radioécologiques de terrain et de laboratoire, établir un modèle du devenir de radioéléments en milieu fluvial.

Ces deux objectifs, relativement ambitieux, permettront de déterminer dans quelle mesure les processus radioécologiques se déroulent de façon similaire dans deux grands bassins fluviaux, ce qui correspond d'ailleurs à une préoccupation de l'Union Internationale des Radioécologistes, qui a constitué un groupe de travail "Grands fleuves".

Sur le plan méthodologique, la démarche qui doit permettre d'atteindre les objectifs fixés peut être subdivisée en trois approches :

1. La collecte des données existantes sur les deux écosystèmes fluviaux, en vue de comparer leur structure : variables hydrodynamiques et hydrologiques, caractéristiques thermiques, caractéristiques des matières en suspension et des sédiments, propriétés physico-chimiques de l'eau, données hydrobiologiques (nature, biomasse, production des composants de la biocénose, relations trophiques, ...);

2. Les études en laboratoire, destinées à préciser les processus de transfert du ^{137}Cs et du ^{60}Co ; un bon exemple de l'apport de l'approche expérimentale est

donnée par le "modèle expérimental" de Lambrechts pour la contamination en ^{137}Cs de la carpe (Lambrechts, 1983). Il faut souligner ici qu'il n'est pas suffisant de déterminer les facteurs de transfert (notion classique en radioécologie; ex. : le facteur de transfert sédiment-eau, appelé aussi "Kd", est le rapport de l'activité du sédiment, en Bq / kg, et de l'activité de l'eau, en Bq / l, à l'équilibre). Ces facteurs de transfert sont en effet souvent variables en fonction des conditions de l'environnement ou de l'expérience : il vaut mieux parler de flux de transfert d'un compartiment vers un autre, ce qui revient à envisager les phénomènes de façon dynamique, dans des conditions bien précisées. Une telle approche est forcément plus complexe : par exemple si l'on envisage le transfert d'un radioélément, le ^{60}Co , via les micro-organismes (algues et bactéries), il faut sans doute étudier expérimentalement les processus suivants (voir fig. 1) :

- l'adsorption-désorption du ^{60}Co en solution par les algues;
- la production nette de matière organique particulaire (POM) par les algues;
- le devenir de la POM algale : sédimentation (→ transfert vers le sédiment), consommation par des phytophages (transfert vers les "particle feeders", comme des mollusques ou du zooplancton filtreurs), transformation en matière organique dissoute (DOM) et incorporation dans la biomasse bactérienne;
- l'activité organotrophe et la production bactériennes, qui déterminent le taux d'assimilation de la POM algale par les bactéries, avec possibilité de relargage du ^{60}Co lors de la transformation de POM en DOM;
- l'adsorption-désorption du ^{60}Co en solution par les bactéries;
- les échanges du ^{60}Co entre la phase dissoute et la phase particulaire (échanges eau - matières en suspension - sédiments);
- le taux de consommation par les "particle feeders".

3. La modélisation qui est bien sûr nécessaire pour décrire, au niveau global, les processus de transfert et leurs interactions, mais qui est aussi très utile en tant qu'appui à l'expérimentation et à l'orientation des recherches. Deux cas peuvent être cités pour illustrer ce double rôle de la modélisation :

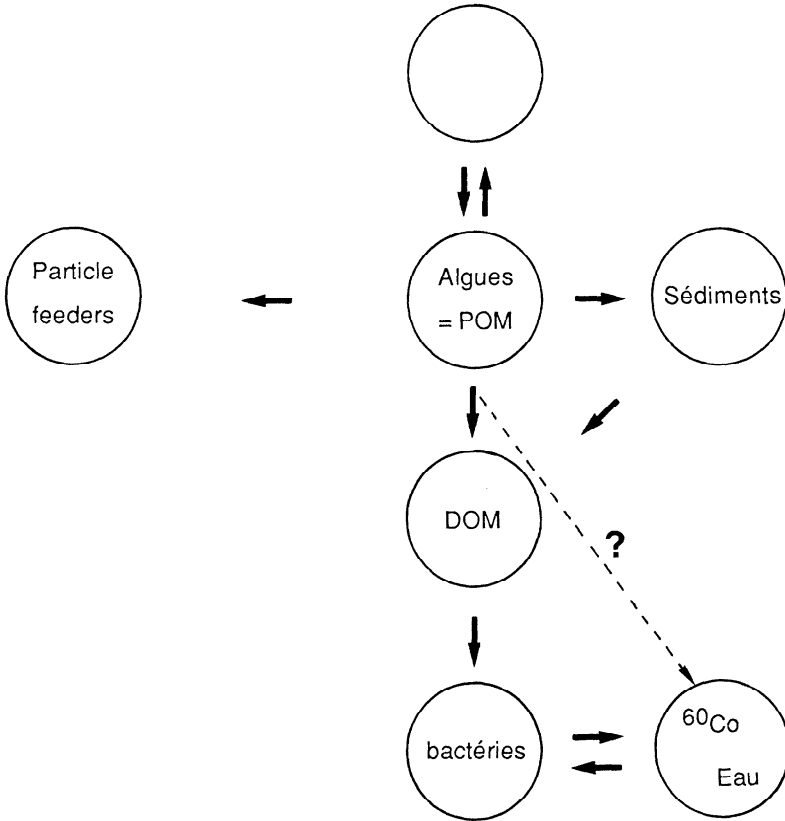


Fig. 1.- Schéma hypothétique du transfert du ^{60}Co de l'eau vers les micro-organismes (algues et bactéries).

- la mise en évidence de l'importance d'échanges entre eau, matières en suspension et sédiments, processus gouvernés en grande partie par les facteurs hydrologiques, pour expliquer la contamination en ^{137}Cs des sédiments de la Meuse (SMITZ et coll., 1985);

- l'application à la fixation de radiosotopes par des cultures d'algues microscopiques (voir communication de SMITZ et coll.), très utile à la conception de protocoles expérimentaux optimisés en vue de l'obtention d'une information maximale.

La mise au point du modèle et son utilisation ultérieure devraient permettre :

- de comprendre les principaux processus de transfert à partir du terme-source;

- de réaliser des simulations, par exemple pour prévoir la contamination des divers compartiments dans différentes configurations du système;

- de progresser dans le domaine de la radioprotection, par exemple par la simulation des transferts à l'Homme par les différentes voies possibles, ce qui devrait permettre la mise au point de normes de rejet et de sécurité adéquates pour les installations nucléaires.

3. Conclusions générales

Au-delà des résultats bruts des études réalisées dans le cadre des programmes décrits ci-dessus, il est important de dégager certaines leçons.

Tout d'abord, il est frappant de constater l'évolution de l'approche des scientifiques. Au départ, les différents laboratoires impliqués se contentaient d'apporter leurs techniques spécifiques et de les appliquer au problème de l'impact des centrales nucléaires. Un bon exemple de cette démarche est l'utilisation des bioindicateurs pour l'étude des rejets thermiques, chimiques et radioactifs. Il s'agissait de techniques mises au point ou utilisées par les différentes équipes, qui, si elles se sont avérées précieuses dans le cadre des programmes de surveillance, ont cependant leurs limites. Actuellement, **la démarche est inversée** : on pose les

problèmes d'une façon globale et on oriente les études de terrain et de laboratoire en fonction des lacunes dans les connaissances. C'est le cas, par exemple, pour divers processus de transfert de radio-éléments dans l'environnement aquatique. Dans le même ordre d'idées, on ressent, face à la complexité des processus et de leurs interactions, la nécessité de faire appel à la modélisation mathématique.

Ensuite, il faut aussi souligner la prise de conscience des complémentarités qui se révèlent à différents niveaux, par exemple :

- entre études de terrain (scientifiques ou de routine) et études de laboratoire;
- entre les approches écologiques et radioécologiques;
- entre les approches radioécologiques et les problèmes de la radioprotection.

En fonction de ces complémentarités, on perçoit une évolution de la manière dont les parties en présence - scientifiques, exploitants, responsables administratifs, "contrôleurs", ... - appréhendent leur domaine spécifique. Cette évolution devrait conduire à une meilleure intégration des différents aspects du fonctionnement des installations nucléaires. On pourrait ainsi aboutir à une meilleure protection de l'Homme et de l'environnement, par l'établissement de normes adéquates et de systèmes de surveillance efficaces, tout en tenant compte des contraintes techniques et économiques de la production d'énergie.

REFERENCES

- BOURDON, M., KIRCHMANN, R., BINET, J., FAGNIART, E. & COLETTE, A. In : "Role of microorganisms on the behaviour of radionuclides in aquatic and terrestrial systems and their transfer to man", UIR-CEC, Bruxelles (1984), 124-131.
- DE CLERCQ-VERSELE, H. & KIRCHMANN, R. (éds), BLG 555, Mol (1982), 54 p.
- DESCY, J.-P. & MOUVET, C., Hydrobiologia 119 (1984), 119-128.
- KIRCHMANN, R. (éd.), BLG 573, Mol (1985), 48 p.
- KIRCHMANN, R. & LAMBINON, J., Bull. Soc. roy. Bot. Belg. 106 (1973), 187-201.
- LAMBINON, J., KIRCHMANN, R. & COLARD, J., Bull. Soc. roy. Bot. Belg. 109 (1976), 157-175.
- LAMBRECHTS, A., Thèse doctorat Univ. Provence (1983), 181 p.

SMITZ, J.S., EVERBECQ, E. & FRERE, E. In "Transport and accumulation of radionuclides in waterways", 3rd meeting, AIEA (1985).

SAMENVATTING.

Deze bijdrage stelt een synthese voor van werkzaamheden over meer dan 10 jaar op het vlak van de ecologie en de radioecologie van de Maas in verband met het impact van de effluenten van PWR kerncentrales (België). De bijdrage van meerdere opeenvolgende studieprogramma's wordt onderstreept en de vooruitgang in de kennis en in de gedachtengang van de opzoekers wordt in het licht gesteld. Tenslotte wordt een lopend programma, gewijd aan de radioecologie van de twee stroomgebieden, in het kort beschreven.

ABSTRACT.

A synthesis is presented of more than 10 years work on the ecology and radioecology of the Meuse river in relation with the impact of the PWR effluents (Belgium). The contribution of different subsequent investigation programs is shown and the progress in the information and in the way of proceeding in the research is emphasised. A running program devoted to the radioecology of both river basins is succinctly described.

Journée d'étude sur Transfert des radionucléides en système fluvial

BIOLOGIE ET RADIOCONTAMINATION DE 3 ESPECES ANIMALES (*Dreissena polymorpha* P. , *Rutilus rutilus* (L.) et *Perca fluviatilis* (L.) REPRESENTATIVES DE DIFFERENTS MAILLONS TROPHIQUES DE L'ECOSYSTEME MEUSE.

A. Gillet et J.-C. Micha

Unité d'Ecologie des Eaux Douces (UNECED)

Facultés N.-D. de la Paix (FNDP)

Rue de Bruxelles, 61

B-5000 Namur BELGIQUE

Mots-clefs : Radioécologie, Meuse, Rhône, Mollusque bivalve, poissons.

Summary

Dreissena polymorpha, a filter-feeding bivalve, is able to concentrate ^{54}Mn and ^{60}Co but not ^{137}Cs in the Meuse river. Isotopes concentrations by this mollusc downstream Tihange nuclear power plant are going down since 1976 and are now under the detection level.

Contrary to *Dreissena*, fish are able to concentrate ^{137}Cs but other isotopes (^{134}Cs , ^{60}Co and ^{54}Mn) are rarely detected. As for *Dreissena*, isotope concentration downstream Tihange nuclear power plant are going down since 1976. These results are very similar to those of Rhone river. But in this case, isotopes concentrations downstream Marcoule nuclear power plant are higher and probably in relation with effluents more concentrated in isotopes.

Introduction

Depuis 1976, dans le cadre de l'étude d'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange sur l'écosystème Meuse (DE CLERCQ-VERSELE et al., 1982; KIRCHMANN et al., 1985), l'Unité d'Ecologie des Eaux Douces (UNECED) des Facultés Universitaires de Namur s'est plus particulièrement intéressée à la radioécologie des macroinvertébrés et des poissons de ce fleuve. Parmi ceux-ci, trois organismes ont fait l'objet d'études plus précises tant au niveau de l'écologie de l'espèce que de sa radiocontamination. Ces organismes sont, d'une part, un petit mollusque bivalve filtreur, *Dreissena polymorpha* P. et, d'autre part, deux poissons : une espèce omnivore (partiellement mallacophage) à tendance herbivore, le gardon, *Rutilus rutilus* (L.), et une espèce carnivore à tendance piscivore, la perche *Perca fluviatilis* (L.).

Pour chacune de ces espèces, nous tentons de faire une synthèse des principaux résultats acquis depuis une dizaine d'années en présentant successivement les données sur la biologie et la radiocontamination de ces 3 espèces.

Pour conclure nous effectuerons une brève comparaison entre les données de radiocontamination des poissons du Rhône et de la Meuse.

1. Centrale nucléaire de Tihange et caractéristiques radiochimiques des effluents

Trois réacteurs nucléaires de type "Pression Water Reactor" (PWR) sont installés sur le site de Tihange, rive droite de la Meuse, et alimentent des turbines qui produisent de l'électricité.

La première unité a une puissance électrique de 870 MWe et est en activité depuis août 1975. L'unité 2 qui a été mise en service en octobre 1982, a une puissance électrique de 900 MWe.

L'unité 3, de puissance égale à 1000 MWe fonctionne depuis juillet 1985.

Les rejets radiochimiques de la centrale sont principalement des produits de fission et d'activation tels que ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{131}I , ^{133}I , ^3H , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{95}Zn , ^{95}Nb , ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{65}Zn et ^{40}K .

La teneur en isotopes de l'eau de la Meuse a été estimée à partir de l'activité volumique ajoutée par les centrales de Chooz et de Tihange (MEURISSE-GENIN et al., 1983).

2. Macroinvertébré filtreur : *Dreissena polymorpha*

2.1. Données biologiques

Dreissena polymorpha est un petit mollusque bivalve, dépassant rarement 25 mm de longueur totale en Meuse (DE CLERCQ-VERSELE et al., 1982). Ce mollusque est relativement peu exigeant quant à la qualité de l'eau. On le retrouve dans presque tous les biefs de la Meuse belge excepté entre Monsin et Lixhe (MEURISSE-GENIN et al., 1986).

Sa densité peut fortement varier. A Anseremme, en septembre 1978, 7143 ind./m² ont été dénombrés en moyenne. Cependant, la densité atteignait, à certains endroits, jusqu'à 24160 ind./m² (PETIT, 1978). Par contre, au même endroit, en septembre 1980, en septembre 1983 et en septembre 1986, la densité était inférieure à 1 ind./m².

Pour respirer et se nourrir, ces moules pompent sans cesse l'eau de la Meuse et filtrent les particules en suspension (phytoplancton, zooplancton et détritiques organiques). Selon MORTON (1971), le taux de filtration d'une *Dreissena* se situe entre 2 et 180 ml/h et dépend principalement de la température de l'eau.

La croissance de *Dreissena polymorpha* est relativement faible. Ainsi, à 1 an, cette moule atteint en moyenne, 2 mm dans la Meuse. A 2 ans, la taille est en moyenne de 4 mm et à 3 ans, les *Dreissena* de la Meuse mesurent quelque 12 mm.

2.2. Données de radiocontamination

La synthèse des données concernant la radiocontamination de *Dreissena* en amont (Andenne, Bas-Oha et Corphalie) et en aval (Ampsins et Ivoz-Ramet) est reprise au Tableau 1 (MEURISSE-GENIN et al., 1983; JEUNIAUX et al., 1984).

Le ^{137}Cs n'est détecté que lors de la première année (1976) d'étude (2,3 Bq/kg à Andenne pour 2,9 Bq/kg à Ampsins). Toutes les activités mesurées ultérieurement se sont révélées inférieures à ces valeurs et restent le plus souvent inférieures au seuil de détection.

De 1976 à 1979, la teneur en ^{60}Co diminue. Elle passe de 9,9 Bq/kg à 3,2 Bq/kg à l'aval de la centrale de Tihange à Ampsins. Le facteur de concentration moyen annuel (*Dreissena* / eau) est estimé à 695 en 1978. Cette année a été choisie comme référence (MEURISSE-GENIN et al., 1982) car l'activité de l'eau ne varie pas de trop (0,004 Bq/l - 0.0017 Bq/l).

La contamination de *Dreissena* en ^{54}Mn atteint des niveaux plus élevés qu'avec les autres isotopes. En 1976, elle s'élève à 18.8 Bq/kg à Andenne et à 21.9 Bq/kg à Ampsins. En 1978, elle est légèrement plus élevée en amont de la centrale (4.6 Bq/kg) qu'en aval (4.1 Bq/kg), ce qui traduit une nette diminution des rejets par la centrale nucléaire de Tihange. Il n'empêche que pour l'année 1978, le facteur de concentration s'élève encore à 1600. Ensuite le ^{60}Co n'est plus détecté chez les *Dreissena* ni en 1979, ni en 1984, quelles que soient les stations (JEUNIAUX et al., 1984). Signalons encore que lorsque l'activité en ^{60}Co est détectée, l'accumulation des isotopes est supérieure dans les parties molles de *Dreissena polymorpha* par rapport aux coquilles (MICHA et al., 1978).

3. Les poissons

Parmi les poissons, deux espèces à régime alimentaire nettement différent ont été étudiées de manière plus approfondie. Le gardon est un poisson omnivore qui consomme notamment des petits mollusques bivalves (*Dreissena polymorpha*) et la perche qui est un poisson exclusivement carnivore notamment piscivore à l'état adulte.

3.1. Le gardon

Le gardon est un poisson commun dans les rivières, canaux et étangs de nos régions. On le retrouve dans tous les biefs de la Meuse. Apprécié des pêcheurs, il fait l'objet de repeuplements parfois importants (GILLET et al., 1984).

La croissance a été examinée en 1976 en éliminant de l'échantillon, les poissons que l'on soupçonnait provenir d'un repeuplement. Le gardon est un poisson qui grandit relativement lentement (GILLET, 1982). A 1 an, sa longueur à la fourche est de 58 mm. A 2 ans, il mesure 91 mm. A 5 ans, sa taille est de 165 mm. A 7 ans, il atteint 194 mm. En 1976, il n'existait pas de différences entre la croissance rétrocalculée du gardon en amont et en aval de la centrale. La taille limite (L_{∞}) du gardon en Meuse est estimée à 35 cm.

Le gardon est une espèce omnivore à tendance herbivore (RICHARD, 1980). En effet, dans 88,6 % des estomacs des gardons examinés, les végétaux étaient présents (Tableau 2). Ces végétaux sont principalement des algues dont des chlorophytes (63,3 % d'occurrence) et des chrysophytes (87,3 % d'occurrence). Cependant, des animaux, principalement des bivalves (20,5 % d'occurrence), des Crustacés (13,4 % d'occurrence) et des Insectes (20,3 % d'occurrence) se retrouvent dans les bulbes intestinaux.

Le régime alimentaire du gardon varie avec la taille (Tableau 3). Les jeunes individus sont plus herbivores (73,0 %) que les individus plus âgés (47,8 %). Par contre, les grands gardons consomment plus d'animaux (26,9 %) que les jeunes individus (12,9 %). Ceci résulte notamment d'une nette augmentation de la consommation de mollusques bivalves (*Dreissena*) chez les grands gardons (19,6 % au lieu de 8,6 %). Par ailleurs, nous constatons qu'en amont de la centrale de Tihange, les gardons consomment plus de mousses et de débris végétaux. Par contre, en aval, la quantité ingérée d'algues, de mollusques et d'arthropodes est plus élevée. De plus, en hiver, le volume moyen de nourriture dans les "estomacs" est nettement plus élevé en aval qu'en amont.

3.1.2. Radiocontamination

Les teneurs en ^{137}Cs des gardons (muscles + squelette) sont les plus élevées (Tableau 4) lors des deux premières années d'étude ($\geq 2,5$ Bq/kg en 1976 et 1977). Toutefois, elles diminuent régulièrement jusqu'en 1983, année où les valeurs deviennent inférieures à la limite du seuil de détection des appareils utilisés.

Quand il est détecté, le ^{137}Cs atteint des valeurs tantôt plus élevées en amont de la centrale, tantôt en aval. La valeur moyenne du facteur de concentration est estimée à 795 pour le ^{137}Cs chez le gardon durant les années 1977, 1978 et 1979 (MEURISSE-GENIN et al., 1983).

En avril 1984, aucune activité n'est mesurée dans les gardons provenant de différentes stations de la Meuse belge.

En septembre, par contre, on observe que l'activité en ^{137}Cs est maximale en aval de la centrale (Ampsin et Ivoz-Ramet) puis diminue régulièrement jusqu'à Lixhe. Il faut toutefois préciser que le conditionnement de ce lot de poissons de septembre 84 a été amélioré. En effet, alors qu'auparavant, les poissons étaient conditionnés entiers dans les pots en plastic, en septembre 84, ils ont été préalablement hachés avant d'être conditionnés. Ce traitement devrait donner plus de précisions aux mesures, ce qui permettrait de détecter, à nouveau, différents isotopes chez le gardon mais toujours en très faibles quantités.

L'activité en ^{60}Co dans les gardons est très faible et à l'exception de trois cas, est inférieure à la limite du seuil de détection.

Le ^{54}Mn est quelquefois détecté dans les gardons mais les activités sont généralement inférieures à la limite du seuil de détection.

3.2. La perche

3.2.1. Données biologiques

Comme le gardon, la perche est un poisson répandu dans nos eaux douces. On le retrouve dans tous les biefs de la Meuse belge.

Une étude concernant la biologie de cette espèce est en cours, ce qui signifie que peu de données sont, à l'heure actuelle disponible. La perche est un prédateur. Durant les premières années de sa vie, elle consomme dans la Meuse du plancton et du benthos. Les individus plus âgés sont plutôt ichtyophages.

3.2.2. Radiocontamination

L'activité en ^{137}Cs des perches (muscles + squelette) est la plus élevée (Tableau 5) durant la première année d'étude (1976) : 5,51 Bq/kg à Andenne et 4.26 Bq/kg à Ampsin. Cette activité, supérieure à celle mesurée chez le gardon, va cependant

s'atténuer au fur et à mesure des années. Elle devient inférieure à 1 Bq/kg en 1981 et descend en-dessous de la limite de détection en 1983.

Les activités sont, tantôt supérieures en amont de la centrale nucléaire de Tihange, tantôt en aval. En avril 1984, l'activité en ^{137}Cs est inférieure à la limite de détection dans toutes les stations. Par contre, en septembre 84, on observe des activités similaires ($\pm 0,84$ Bq/kg) à Lives-sur-Meuse, Ampsin et Ivoz-Ramet. La teneur maximale est mesurée à Argenteau (1,26 Bq/kg). Le facteur de concentration moyen de cet élément dans les perches de Meuse est estimé à 1312 pour les années 1977, 1978 et 1979 (MEURISSE-GENIN et al., 1983).

Le ^{134}Cs est également mis en évidence dans la perche. Toutefois, les teneurs sont inférieures à la limite de détection excepté pour trois échantillons récoltés en septembre 84 à Ampsin, à Ivoz-Ramet et à Lixhe.

La radiocontamination en ^{60}Co et en ^{54}Mn dans les perches de la Meuse (Tableau 5) est le plus souvent inférieure à la limite du seuil de détection.

4. Discussion

Dreissena polymorpha est un bioaccumulateur de ^{54}Mn et dans une moindre mesure de ^{60}Co . Par contre, la moule accumule peu le ^{137}Cs . Tant en amont qu'en aval de la centrale nucléaire de Tihange, les activités isotopiques ont diminué de 1976 à 1978 et sont devenues inférieures à la limite de détection depuis cette année. Ceci peut s'expliquer par la diminution des activités ajoutées dans la Meuse par les centrales de Chooz et de Tihange (MEURISSE-GENIN et al., 1983). En 1976 et 1977, les rejets en ^{54}Mn de la centrale de Tihange étaient de loin inférieures à ceux de la centrale de Chooz ($0,81 \times 10^{-2}$ Bq/L contre $5,33 \times 10^{-2}$ Bq/L en 1976; $0,11 \times 10^{-2}$ Bq/L contre $0,56 \times 10^{-2}$ Bq/L en 1977). C'est pourquoi, sans doute, aucune différence d'activité ne se marque entre les moules provenant de l'amont de Tihange et celles provenant de l'aval.

Au contraire de *Dreissena polymorpha*, les poissons accumulent surtout le ^{137}Cs et l'activité est, en général, légèrement supérieure chez la perche par rapport au gardon. Cette concentration du ^{137}Cs dans la chaîne alimentaire d'un écosystème aquatique concorde avec ceux d'autres auteurs (ETTENHUBER et RÖHNSCH, 1975; FOULQUIER, 1979). Le facteur de concentration observé chez les gardons de Meuse en 1977, 1978 et 1979 (795) est supérieur à celui observé en Meuse en 1971 (3336) par MICHOLET-COTE et al. (1973) et dans l'Elbe (356) et l'Oder (480) par ETTENHUBER et RÖHNSCH (1975).

Ces mêmes auteurs calculent des facteurs nettement plus faibles (62) dans une baie de la Baltique (Greifwalder Bodden) et plus élevés (1034) dans un lac oligotrophe (Stechlinsce). De la même façon, le facteur de concentration des perches de Meuse (1312) est compris entre les facteurs de concentration des perches de ces deux lacs (272 et 3090, respectivement). Il est similaire à celui (1480) d'un autre lac, le Muggelsee.

La diminution de l'activité en ^{137}Cs des poissons de Meuse peut s'expliquer par la diminution des rejets par les centrales de Chooz et de Tihange. Ainsi, de 1976 à 1979, les rejets en ^{137}Cs de Chooz sont passés de $3,55 \times 10^{-2}$ Bq/L à $0,56 \times 10^{-2}$ Bq/L. De 1976 à 1981, les rejets moins élevés de la centrale de Tihange sont passés de $1,81 \times 10^{-2}$ Bq/L à $0,03 \times 10^{-2}$ Bq/L (MEURISSE-GENIN et al., 1983).

La comparaison des données de radiocontamination mesurées dans les poissons de Meuse et celles mesurées dans les poissons du Rhône (LAMBRECHTS et FOULQUIER, 198) montre que les activités en ^{137}Cs sont comparables jusqu'à Marcoule (Tableau 6). En effet, suivant les stations du Rhône, l'activité moyenne varie de 0,26 à 2,02 Bq/kg. En Meuse, elle varie de 0,15 à 5,51 Bq/kg suivant les années d'observations. Cette différence ne signifie pas nécessairement que la contamination des poissons de Meuse pourrait être plus élevée que pour les poissons du Rhône mais résulte probablement des différences de conditionnement des poissons prélevés en plus grandes quantités sur le Rhône, ce qui permet une minéralisation du matériel avant mesures.

Sur le Rhône, en aval de Marcoule, l'activité moyenne est nettement plus élevée (11 au lieu de 0,6 Bq/kg), ce qui n'est pas le cas pour les poissons de Meuse en aval de la centrale de Tihange.

Le facteur de concentration calculé pour les poissons du Rhône est, en moyenne, de 700 avec des valeurs extrêmes de 128 et de 1680 (Foulquier, 198?). Cette valeur est comparable à celle enregistrée pour les gardons (795) et pour la perche (1312).

Tout comme en Meuse, le ^{137}Cs n'est détecté que très rarement dans les poissons du Rhône (25 % des cas) et essentiellement en aval de Marcoule.

En Meuse, l'activité en ^{60}Co n'a été détectée qu'exceptionnellement et était d'environ 1,3 Bq/kg. Dans le Rhône, le ^{60}Co semble un peu plus présent. L'activité moyenne de cet élément varie de 0,10 à 2,21 Bq/kg. Le pourcentage de résultats significatifs par rapport au nombre de mesures réalisées est seulement de 12 % .

Il semble donc qu'en général, la radiocontamination par le ^{137}Cs , ^{134}Cs et le ^{60}Co des poissons du Rhône et de la Meuse est comparable exception faite des poissons

provenant du Rhône en aval de Marcoule qui sont nettement plus contaminés, ceci est probablement à mettre en relation avec des rejets plus importants par cette centrale nucléaire.

Références bibliographiques

- DE CLERCQ-VERSELE, H. & KIRCHMANN, R. (1982). "L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse : cinq années d'étude in situ et d'approche expérimentale (1976-1980)", BLG-555, CEN/SCK, Mol, Belgique, 34 p.
- ETTENHUBER, E. and RÖHNSCH, W. (1975). "The fish-water accumulation factor. An important parameter for determining the environmental capacity of surface waters". In : Intern. Symp. on radiological impacts of releases from nuclear facilities into aquatic environments. Otaniemi, Helsinki, Finlande, 30 juin-4 juillet 1975, I.A.E.A.-SM-198/15, 473-482.
- FOULQUIER, L. (1979). "Etude bibliographique sur la capacité et les modalités de fixation du radiocésium par les poissons". Bibliographie CEA-BIB-231 (2), 124-360.
- GILLET, A. (1982). Etude de la croissance du gardon, *Rutilus rutilus* (L), en amont et en aval de la centrale nucléaire de Tihange : influence des rejets thermiques. Mém. Ir. Agronome, U.C.L., 122 p.
- GILLET, A.; MICHA, J.-C.; REYDAMS, A. et MEURISSE, M. (1984). "Incidence des repeuplements dans la population de gardons *Rutilus rutilus* (L.) en Meuse. Cybium, 8 (3), 51-61.
- JEUNIAUX, Ch., LAMBINON, J., MICHA, J.-C., NIHOUL, J. et WOLLAST, R. (1984). Surveillance écologique de la Meuse en aval du site de Tihange. Ministère de la Région Wallonne pour l'eau, l'environnement et la vie rurale, Bruxelles, Belgique, 3 vol., 357 p.
- KIRCHMANN, R. (1985). L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse : études in situ et recherches expérimentales durant la période 1981-1984. BLG573, CEN/SCK, Mol, Belgique, 48 p.
- LAMBRECHTS, A. et FOULQUIER, L. (198). "Radioecology of the Rhône Basin. Data concerning the fish of the Rhône (1974-1984). J. Env. Radioact., sous presse.

- MEURISSE-GENIN, M.; REYDAMS-DETOLLENAERE, A.; MICHA, J.-C. et KIRCHMANN, R. (1984). Contamination radioactive de la faune aquatique de la Meuse". In Proc. Sem. "Environmental transfer to man of radionuclides released from nuclear installation". CEE, Luxembourg, 17-21 October 1983, 1 : 287-305.
- MEURISSE-GENIN, M.; REYDAMS-DETOLLENAERE, A.; STROOT, Ph. et MICHA, J.-C. (1986). Les macroinvertébrés benthiques de la Meuse belge : bilan de cinq années de recherches (1980 à 1984). Archiv. Hydrobiol., sous presse, 22 p.
- MICHA, J.-C. et GENIN, M. (1978). "Impact des centrales nucléaires sur les écosystèmes dulcicoles". Naturalistes belges, 59, 149-158.
- MICHOLET-COTE, C. et KIRCHMANN, R. (1973). Etude de la radiocontamination des poissons de la Meuse. In : Environmental behaviour of radionuclides released in the nuclear industry. Symp. Aix-en-Provence, France, 14-18 mai 1973, I.E.E.A., SM-172/69, 413-429.
- MORTON, B. (1971). "Studies on the biology of *D. polymorpha* Pallas. Some aspects of filter-feeding and the effect of micro-organisms upon the rate of filtration. Proc. Malac. Soc. Lond., 39, 289-301.
- PETIT, M. (1978). "Ecologie et répartition spatiale des macroinvertébrés benthiques de la Haute Meuse belge". Mém. Lic. Sci. Zool., FNDP, Namur, Belgique, 79 p.
- RICHARD, M.-J. (1980). "Une première approche du régime alimentaire de *Rutilus rutilus* (L.) en Meuse. Mém. Lic. Sci. Zool., FNDP, Namur, Belgique, 90 p.

Tableau 1 : Evolution de la concentration de certains radioéléments chez *Dreissena polymorpha* récoltées en amont (Andenne, Bas-Oha, Corphalie) et en aval (Ampsin et Ivoz-Ramet) de la centrale nucléaire de Tihange (* pas de mesure; - : inférieur à la limite du seuil de détection).

Année	Station	^{137}Cs	^{60}Co	^{54}Mn
		Moyenne (Bq/Kg)	Moyenne (Bq/Kg)	Moyenne (Bq/Kg)
1976	Andenne	2,3	6,5	18,8
	Ampsin	2,9	9,9	21,9
1978	Andenne	-	4,5	4,6
	Ampsin	-	5,7	4,1
1979	Andenne	*	*	*
	Ampsin	-	3,2	-
1984	Bas-Oha	-	-	-
	Corphalie	-	-	-
	Amay	-	-	-
	Ivoz-Ramet	-	-	-

Tableau 2 : Composition qualitative du régime alimentaire du gardon en Meuse (d'après Richard, 1980) (L : larves ; N : nymphes ; Ad : adultes).

TAXONS	% OCCURENCE
VEGETAUX	
Chlorophytes	63,29
non filamenteuses	42,28
filamenteuses	44,56
Rhodophytes	4,30
Cyanophytes	29,11
Chrysophytes	86,84
Xanthophyceae	11,65
Bacillariophyceae (= Diatomées)	86,84
Mousses <i>Platyhypnidium riparioides</i>	11,65
Végétaux indéterminés	47,85
Détritus	84,81
Total des végétaux	88,61
Total des végétaux et détritus	94,17
ANIMAUX	
Rotifères	3,54
Bryozaires	6,08
Nématodes	1,27
Mollusques (principalement <i>Dreissena</i>)	20,51
Crustacés	13,42
Cladocères	10,13
Copépodes	1,77
Insectes	20,25
Diptères	16,71
Trichoptères L.	3,04
Coléoptères Ad.	0,76
Hémiptères Ad.	0,51
Hyménoptères Ad.	0,25
Lépidoptères Ad.	0,25
Arachnides	0,25
Hydracariens	0,51
Myriapodes diplopedes	0,25
Parasites	2,28
Total des animaux	47,85

Tableau 3 : Variations semi-quantitatives (méthode des points) du régime alimentaire du gardon de Meuse en fonction de la taille (d'après RICHARD, 1980).

Taxon	Petits gardons (< 19 cm)	Grands gardons (> 19 cm)
	% points	% points
VEGETAUX		
Chlorophytes	16,90	7,74
non filamenteuses	1,20	1,16
filamenteuses	15,70	6,58
Rhodophytes	0,09	0,01
Cyanophytes	1,93	2,90
Chrysophytes	50,22	17,63
Xanthophyceae	0,84	2,36
Bacillariophyceae (= Diatomées)	49,38	15,30
Total des Algues	69,14	28,37
Mousses (<i>Platyhypnidium riparioides</i>)	0,47	9,47
Végétaux indéterminés	3,37	9,91
Graines de végétaux	0,01	0,63
<u>Total des végétaux</u>	72,98	47,78
Détritus (vase et débris indéterminés)	14,17	25,32
Total des végétaux et détritus	87,15	73,10
ANIMAUX		
Bryozaires	0,92	2,27
Mollusques (essentiellement <i>Dreissena</i>)	8,63	19,61
Arthropodes	3,3	0,82
Détris d'animaux	0	0
<u>Total des animaux</u>	12,85	26,90

Tableau 4 : Activités moyennes annuelles (1976 à 1983) et ponctuelles (avril et septembre 1984) mesurées dans des gardons capturés dans différentes stations de Meuse en amont et en aval de la centrale nucléaire de Tihange. (- : activité non détectée ou inférieure à la limite du seuil de détection).

Année	Station	^{137}Cs (Bq/Kg)	^{134}Cs (Bq/Kg)	^{60}Co (Bq/Kg)	^{54}Mn (Bq/Kg)
1976	Andenne	2,48	1,81	-	-
	Ampsin	3,37	1,37	-	-
1977	Andenne	3,85	-	-	-
	Ampsin	3,37	-	1,33	-
1978	Andenne	1,67	-	1,22	2,96
	Ampsin	1,59	-	-	-
1979	Andenne	0,93	-	-	-
	Ampsin	1,22	-	-	-
1980	Lives	0,89	-	-	-
	Ampsin	0,74	-	-	-
1981	Lives	0,33	-	-	-
	Ampsin	0,33	-	-	-
1982	Lives	0,15	-	-	-
	Ampsin	0,19	-	-	-
1983	Lives	-	-	-	-
	Ampsin	-	-	-	-
Avril 1984	Lives	-	-	-	-
	Ampsin	-	-	-	-
	Ivoz-Ramet	-	-	-	-
	Monsin	-	-	-	-
	Argenteau	-	-	-	-
	Lixhe	-	-	-	-
Septembre 1984	Lives	0,40	-	-	-
	Ampsin	0,71	0,41	-	-
	Ivoz-Ramet	0,72	0,16	-	-
	Monsin	0,47	-	-	-
	Argenteau	0,29	-	0,23	-
	Lixhe	0,19	-	-	-

Tableau 5 : Activités moyennes annuelles (1976 à 1983) et ponctuelles (avril et septembre 1984) mesurées dans des gardons récoltés dans différentes stations de Meuse en amont et en aval de la centrale nucléaire de Tihange. (* : espèce non capturée ou mesure non effectuée; - : activité non détectée ou inférieure à la limite du seuil de détection).

Année	Station (Bq/Kg)	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs (Bq/Kg)	⁶⁰ Co (Bq/Kg)	⁵⁴ Mn (Bq/Kg)
1976	Andenne	5,51	-	-	-
	Ampsin	4,26	-	-	-
1977	Andenne	3,92	-	-	-
	Ampsin	3,40	-	-	-
1978	Andenne	4,40	-	-	-
	Ampsin	1,70	-	-	-
1979	Andenne	2,44	-	-	-
	Ampsin	1,91	-	-	-
1980	Lives	-	-	-	-
	Ampsin	2,41	-	-	-
1981	Lives	0,48	-	-	-
	Ampsin	0,85	-	-	-
1982	Lives	0,16	-	-	-
	Ampsin	0,19	-	-	-
1983	Lives	0,15	-	-	-
	Ampsin	-	-	-	-
Avril 1984	Lives	-	-	-	-
	Ampsin	-	-	-	-
	Ivoz-Ramet	-	-	-	-
	Monsin	-	-	-	-
	Argenteau	-	-	-	-
	Lixhe	-	-	-	-
Septembre 1984	Lives	0,84	-	0,39	-
	Ampsin	0,84	0,44	0,35	-
	Ivoz-Ramet	0,83	0,44	-	-
	Monsin	*	*	*	*
	Argenteau	1,26	-	-	-
	Lixhe	0,5	0,09	0,37	-

Tableau 6 : Concentrations moyennes (1974-1984) en radionucléides des poissons provenant de différentes zones du Rhône (modifié d'après Lambrechts et Foulquier, 198).

Zone	Km	¹³⁷ Cs (Bq/Kg)	¹³⁴ Cs (Bq/Kg)	⁶⁰ Co (Bq/Kg)
Lac Léman	< 300	0.98	-	-
Leman-Greys	300-407	0.29	-	-
Greys-Bugey	408-440	0.31	-	0.88
Bugey-St Alban	441-535	2.02	0.43	3.00
St Alban-Gruas	536-631	0.26	-	0.12
Gruas-Tricastin	632-669	0.29	-	0.10
Tricastin-Marcoule	670-690	0.63	0.27	0.17
Aval de Marcoule	> 690	11.16	2.35	2.21

RESUME

Dreissena polymorpha, un mollusque bivalve filtreur est capable de concentrer le Mn-54 et le Co-60 mais pas le Cs-137 dans la Meuse. Les concentrations d'isotopes par ce mollusque en aval de la centrale nucléaire de Tihange ont diminué depuis 1976 et sont actuellement en dessous des limites de détection. Contrairement aux Dreissena, les poissons sont capables de concentrer le Cs-137 mais les autres isotopes (Cs-134, Co-60 et Mn-54) sont rarement détectés. Comme pour les Dreissena, les concentrations en isotopes en aval de la centrale nucléaire de Tihange diminuent depuis 1976. Ces résultats sont fort semblables à ceux du Rhône mais dans ce cas les concentrations en isotopes en aval de la centrale nucléaire de Marcoule sont plus élevées, probablement en relation avec des effluents plus concentrés en isotopes.

SAMENVATTING.

Dreissena polymorpha, een filter tweeschalig weekdier kan wel Mn-54 en Co-60 maar niet Cs-137 uit de Maas stroom concentreren. De isotopenconcentraties in dit weekdier stroomafwaarts van de kerncentrale van Tihange verminderen sinds 1976 en liggen nu onder de detectie niveau's. In tegenstelling met Dreissena, kunnen vissen Cs-137 concentreren maar andere isotopen (Cs-134, Co-60 en Mn-54) worden zelden gemeten. Zoals met Dreissena dalen sinds 1976 de isotopen concentraties stroomafwaarts van de kerncentrale van Tihange. Deze resultaten zijn vergelijkbaar met die van de Rhône stroom. In dit geval echter liggen de isotopen concentraties stroomafwaarts van de kerncentrale van Marcoule hoger, waarschijnlijk in verband met effluenten met een hogere isotopen concentratie.

Annales de l'Association Belge de Radioprotection, vol. 12, n° 2 - 3 (1987).

*Contamination d'une algue verte d'eau douce
(Scenedesmus obliquus) par des radionucléides
typiques des rejets d'une centrale PWR: culture
dans un turbidostat.*

*L. Sombré, S. Carraro et C. Myttenaere
Laboratoire de Physiologie Végétale, Place Croix du Sud, 4,
1348 - Louvain-la-Neuve (Belgique).*

RESUME

La fixation de radiopolluants typiques des rejets d'une centrale P.W.R. chez l'algue verte d'eau douce Scenedesmus obliquus est étudiée par une méthode de culture en continu et en conditions contrôlées (turbidostat). Les facteurs de transfert obtenus sont de 1300, 2000, 40, 16 et 45-55 pour le ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{99}Tc , ^{134}Cs et ^{137}Cs respectivement.

L'élimination du radiocésium se fait en deux phases distinctes caractérisées par une période biologique courte inférieure à une heure et par une période longue de l'ordre du jour. Le métabolisme photosynthétique de l'algue est responsable de 25% de la décorporation.

1. INTRODUCTION

Les besoins croissants en énergie conduisent à une augmentation du nombre des installations nucléaires, ce qui pose un problème hydrobiologique lié à l'introduction dans les écosystèmes dulcicoles d'effluents faiblement radioactifs. L'accident survenu en URSS au niveau de la centrale graphite-gaz de Tchernobylsk (26 avril 1986) illustre parfaitement l'importance de ce type de problème. En effet, dans un avenir proche, les radioéléments à longue période physique rejetés accidentellement par la centrale, tels que le ^{137}Cs et ^{134}Cs pourront être incorporés dans la biocénose pour y jouer un rôle à long terme. Pour évaluer les processus de concentration des radioéléments rejetés par un réacteur de type P.M.R. au niveau des premiers maillons d'une biocénose d'eau douce, nous avons testé la capacité fixatrice d'une algue verte (Scenedesmus obliquus) par une méthode de culture en continu de type "turbidostat".

Cette approche permet de maintenir une population de microorganismes à une densité cellulaire et à un taux de croissance constants de manière répétitive, garantissant ainsi un état d'équilibre physiologique stable ("steady state") [1], [2].

Dans cette optique, nous avons quantifié l'accumulation de différents radiopolluants (^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{99}Tc , ^{134}Cs et ^{137}Cs) par *S. obliquus*. Enfin, des cinétiques de désorption de ^{134}Cs et de ^{137}Cs chez *S. obliquus* sont réalisées à partir d'une radiocontamination de culture en continu (turbidostat).

2. MATERIEL ET METHODES

2.1 ETUDES EN TURBIDOSTAT

L'algue verte unicellulaire d'eau douce Scenedesmus obliquus a été choisie pour son taux de multiplication élevé, ses conditions de culture aisément contrôlables; elle est citée par de nombreux auteurs en tant que bioindicateur de l'écosystème rosan [3], [4], [5].

Le milieu de culture utilisé est dérivé de celui décrit par H.M. Müller (1961), il favorise une croissance optimale de l'algue étudiée [6]. La composition de ce milieu nutritif est donnée dans le tableau 1 (ajuster le pH à 6 - 6.1).

La figure 1 illustre l'installation de culture en continu utilisée. La densité cellulaire de la culture (1500 ml) est maintenue entre un seuil minimum et un seuil maximum où se produit un apport de milieu nutritif frais qui, diluant la suspension d'algues, se poursuit jusqu'à ce que la densité atteigne la valeur du seuil minimum. La fraction de renouvellement est recueillie par le trop-plein pour analyse. L'enregistreur X-t connecté au "turbidimètre" traduit cette succession de dilutions et de phases de croissance cellulaire.

SELS	P. M.	mg/l	MOLARITE ($\mu\text{M}/\text{l}$)	NORMALITE (meq/l)
KH_2PO_4	136.09	280	2.06	2.06
KNO_3	101.11	1140	11.27	11.27
$\text{MgSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$	246.48	180	0.73	1.46
Fe(III)EDTA-Na	367.05	5.81	$1.53 \cdot 10^{-2}$	$\text{EDTA: } 6.33 \cdot 10^{-2}$ $\text{Fe: } 4.75 \cdot 10^{-2}$ $\text{Na: } 1.58 \cdot 10^{-2}$
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	147.01	3.53	$2.40 \cdot 10^{-2}$	$4.80 \cdot 10^{-2}$
H_3BO_3	61.83	2.86	$4.62 \cdot 10^{-2}$	$1.38 \cdot 10^{-1}$
$\text{MnSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$	169.01	1.55	$9.17 \cdot 10^{-3}$	$1.83 \cdot 10^{-2}$
$\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	287.54	0.222	$7.72 \cdot 10^{-4}$	$1.54 \cdot 10^{-3}$
$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	249.68	0.079	$3.16 \cdot 10^{-4}$	$6.33 \cdot 10^{-4}$
$\text{Co(NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	291.03	0.059	$2.02 \cdot 10^{-4}$	$4.04 \cdot 10^{-4}$
$(\text{NH}_4)_6\text{MgO}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	1235.86	0.016	$1.29 \cdot 10^{-5}$	$7.74 \cdot 10^{-5}$

Tableau 1: Composition du milieu nutritif pour 1 litre de solution prête à l'emploi.

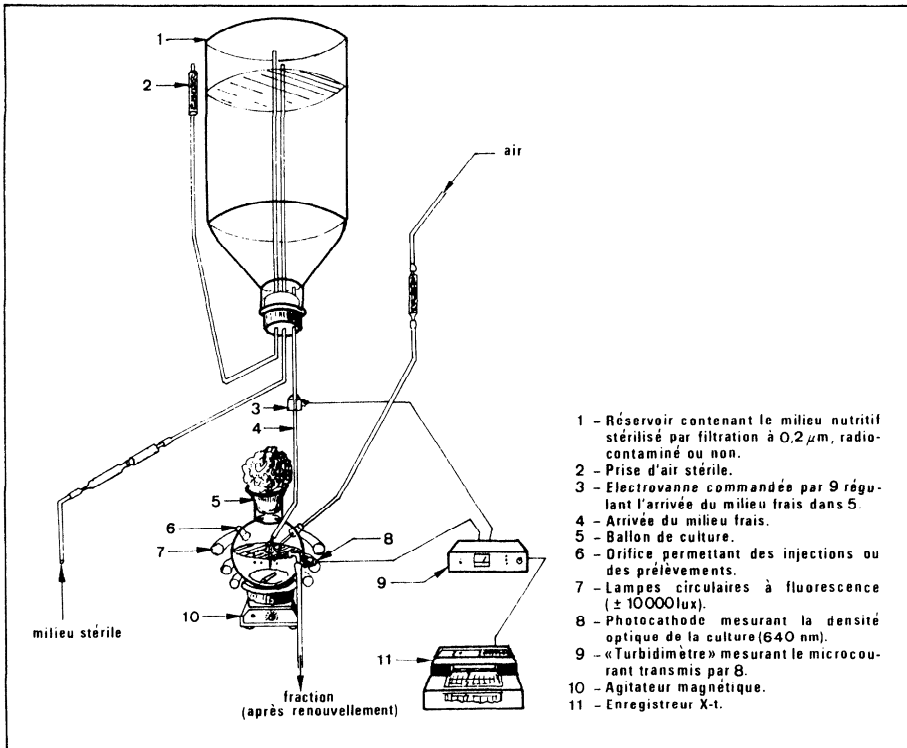


Figure 1 : Schéma du «turbidostat» utilisé pour la culture en continu de *Scenedesmus obliquus*, en vue de l'étude du transfert de radioéléments.

Cette méthode de culture permet d'évaluer facilement la fixation de radionucléides chez le microorganisme maintenu dans un état physiologique stable au cours du temps (steady state).

Les radionucléides testés ($^{54}\text{MnCl}^n$, $^{59}\text{FeCl}^n$, $^{60}\text{CoCl}^n$, $\text{Ni}_4^{99}\text{TcO}_4$, $^{134}\text{CsCl}$ et $^{137}\text{CsCl}$ - AMERSHAM - England) sont étudiés séparément en turbidostat où ils sont présents directement dans le milieu nutritif de réserve. Un inoculum d'une culture de *S. obliquus* non radiocontaminé est injecté dans le ballon de culture.

L'activité du milieu nutritif frais est de: $3.7 \cdot 10^4$ Bq/l pour ^{54}Mn - ^{134}Cs - ^{137}Cs ; de $6.3 \cdot 10^4$ Bq/l pour ^{59}Fe ; de $1.85 \cdot 10^5$ Bq/l pour ^{59}Fe - ^{60}Co .

Lors des rejets de renouvellement du milieu de culture, les suspensions d'algues sont centrifugées (24 000g - 20min). Le surnageant et le culot sont séparés. Une aliquote du surnageant (5 ou 10ml) est conservée dans une fiole de comptage pour en évaluer le niveau d'activité. Le culot est lavé, centrifugé et pesé après dessiccation (105°C - 24h).

Dans le cas de l'émetteur bêta (^{99}Tc), le culot est minéralisé (HNO_3 65%) puis blanchi (H_2O_2) sur bain de sable chaud directement dans la fiole de comptage. Le résidu est repris dans 5ml d' HNO_3 0,2 N puis mélangé à 5ml de liquide scintillant (Instagel Packard). Les 5ml du surnageant de centrifugation sont également mélangés à 5ml d'Instagel. Le comptage de l'activité des échantillons se fait à l'aide d'un spectromètre à scintillation liquide Tri-Carb Packard 2450.

Pour les autres radioéléments, tous des émetteurs gamma, les activités du culot et de l'aliquote du surnageant de centrifugation sont déterminées à l'aide d'un spectromètre à scintillation auto-gamma Packard à cristal puits Na-I.

L'évaluation du transfert du radioélément vers l'algue se fait par le calcul du facteur de transfert sur base du poids sec:

$$F.T. = \frac{\text{Activité/g sec d'algue}}{\text{Activité/ml de milieu}}$$

Rapport poids sec/poids frais = 0.24

La croissance de *Scenedesmus obliquus* est suivie par l'augmentation de la densité optique transmise par le "turbidimètre" (unité arbitraire), par numération à l'aide d'une cellule de comptage (cellule de Bürker d'un volume de $9 \cdot 10^{-4}$ ml) ainsi que par la mesure du poids sec (filtration sous vide 1.2 μm).

2.2 ETUDES COMPARATIVES DES CINÉTIQUES DE DÉCORPORATION

2.2.1 Cinétiques de décorporation des ^{134}Cs et ^{137}Cs

Deux installations de culture en continu sont utilisées. Le milieu nutritif de la première est marqué au ^{134}Cs ($5.44 \cdot 10^5$ Bq/l) tandis que celui de la deuxième est marqué au ^{137}Cs ($1.85 \cdot 10^5$ Bq/l).

Plusieurs fractions de renouvellement de milieu nutritif sont récoltées. Dans les deux cas, chaque fraction est considérée comme une répétition. Après centrifugation (24 000g - 20min) et comptage de l'activité initiale du culot d'algues, celui-ci est remis en suspension dans un volume de milieu nutritif inactif égal à celui de la fraction de renouvellement.

Les algues sont maintenues en suspension homogène sur agitateur magnétique. A des durées de contact (algues - milieu "froid") croissantes, 40 ml de suspension sont prélevés, centrifugés; le culot après dessiccation (105°C - 24h) est pesé puis son activité est déterminée.

2.2.2 Influence de la température et de l'obscurité sur la décorporation du ^{134}Cs

Dans une installation de culture en continu, on récupère les algues d'une fraction de renouvellement du milieu nutritif (marqué à $1.1 \cdot 10^6$ Bq/l en ^{134}Cs). Celles-ci sont réparties en deux lots identiques dont le niveau d'activité initial, comparable, est mesuré après centrifugation (24 000 g - 20 min).

Les deux lots vont subir une succession de deux désorptions; l'un à 22°C et à la lumière, l'autre à 4°C et à l'obscurité.

Lors de la première désorption, les algues des deux lots sont mises en suspension sur agitateur magnétique dans 1500 ml d'eau pendant 24h.

A différents intervalles de temps, 20 ml de suspension sont récoltés et les algues récupérées par filtration à $1.2 \mu\text{m}$ sous vide. L'activité du filtre est ensuite mesurée.

Au bout de 24h, les algues restantes sont centrifugées et remises à désorber dans 1300 ml d'eau inactive (volume identique pour les deux lots). La manipulation est répétée à nouveau pendant 24h.

3. RESULTATS

3.1 CROISSANCE DE *SCENEDESMUS OBLIQUUS* EN TURBIDOSTAT

Un inoculum de *Scenedesmus obliquus* est injecté dans le ballon de culture d'un turbidostat. La densité optique de départ au niveau du turbidostat est ajustée à la valeur 24 de notre échelle. La figure 2 compare les courbes de croissance obtenues exprimées en densité optique, en gramme sec et en nombre de cellules d'algues par ml de suspension.

Ces courbes ont une allure caractéristique en S. Après une phase de croissance exponentielle, on observe une phase linéaire (taux de multiplication constant) de la 50^{ième} à la 100^{ième} heure puis un aplatissement des courbes correspondant à la phase de plateau. Le turbidimètre est "calé" entre des valeurs de densité optique minimum de 40 et maximum de 47.

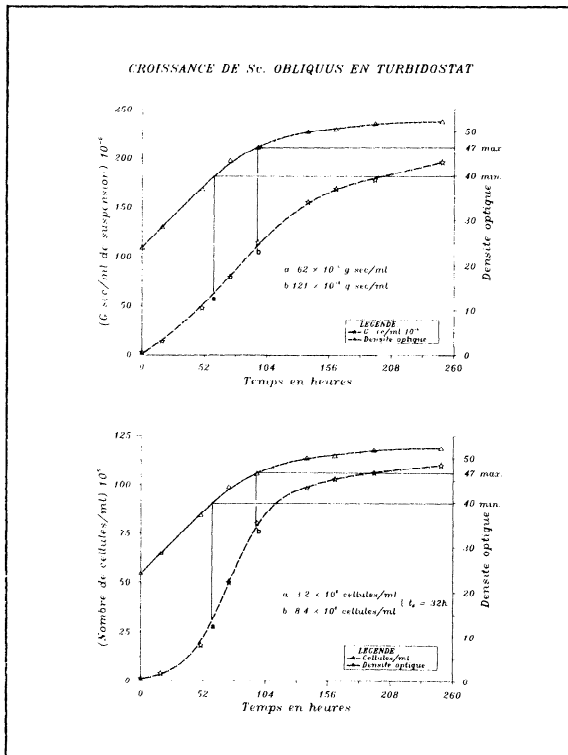


Figure 2: Croissance de *S. obliquus* en culture en continu (turbidostat).

Ce réglage permet de conserver la population de *S. obliquus* en phase de croissance maximale tout en optimisant la biomasse obtenue nécessaire à une bonne analyse des algues récoltées dans les fractions de renouvellement du milieu nutritif.

Dans ces conditions, la biomasse algale passe de $3.2 \cdot 10^6$ à $8.4 \cdot 10^6$ C/ml en 43 h (1.8 jours), ce qui correspond à un gain de $59 \cdot 10^{-6}$ g sec/ml de suspension. Le temps de dédoublement cellulaire est d'environ 32 h dans cette zone de la courbe de croissance; td passe de 11.2 h dans la phase de croissance exponentielle à 150-170 h dans la phase de plateau. Nous observons un renouvellement partiel des 1500 ml de la culture toutes les 43 h environ avec un apport de 1000 ± 100 ml de milieu frais.

3.2 FACTEURS DE TRANSFERT

Les facteurs de transfert (sur base du poids sec) obtenus dans nos conditions expérimentales sont repris dans le tableau 2.

Radionucléide (Bq/l)	F.T.
^{54}Mn ($3.70 \cdot 10^4$)	1300 ± 170
^{59}Fe ($1.85 \cdot 10^5$)	2000 ± 90
^{60}Co ($1.85 \cdot 10^5$)	38 ± 5
^{99}Tc ($6.30 \cdot 10^4$)	16 ± 3
^{134}Cs ($3.70 \cdot 10^4$)	46 ± 4
^{137}Cs ($3.70 \cdot 10^4$)	53 ± 6

Tableau 2: Facteurs de transfert eau - *Scenedesmus obliquus* obtenus en culture en continu (turbidostat).

Les facteurs de transfert relevés dans la littérature chez les algues vertes d'eau douce et les plantes aquatiques (à partir de mesures in situ et en laboratoire), sont très variables. Nos résultats expérimentaux s'inscrivent dans la fourchette de valeurs des F.T. (calculés sur la base du poids sec) suivantes: de $3 \cdot 10^2$ à $7 \cdot 10^3 - 10^3$ en moyenne- pour le ^{54}Mn , [7,8,9,10]; de 10^3 à $10^4 - 10^3$ en moyenne- pour le ^{59}Fe , [7]; de 20 à $3 \cdot 10^3 - 10^2$ en moyenne- pour le ^{60}Co dans les plantes d'eau douce et 10^4 pour les algues vertes in situ [7,11,12]; de 40 à $10^3 - 40$ en moyenne- pour le ^{99}Tc , dans les plantes d'eau douce, [13]; de 20 à $4 \cdot 10^3 - 10^2$ en moyenne- pour le ^{134}Cs et ^{137}Cs chez les algues vertes, [14]; de 20 à $3 \cdot 10^2$ pour le ^{137}Cs , [15,16,17].

Dans le cas du ^{134}Cs , les facteurs de transfert évoluent peu en regard de la croissance de *S. obliquus*: ils passent de 45 en début de croissance à 87 au niveau de la phase plateau; (Tableau 3). Snitz et al. (1986, [18]) en modélisant une culture en continu simulée, obtiennent des résultats en accord avec nos données expérimentales.

Phase de croissance	F.T.
exponentielle	45
linéaire	47-71
plateau	87

Tableau 3: évolution du F.T. du ^{134}Cs chez Scenedesmus obliquus en culture en continu (turbidostat)

3.3 CINÉTIQUES DE DÉCORPORATION COMPARÉES DU ^{134}Cs ET DU ^{137}Cs

S. obliquus se décontamine en deux phases distinctes, l'une caractérisée par une désorption rapide de période biologique $Tb_1 < 1$ h, l'autre présentant une désorption plus lente de période biologique Tb_2 comprise entre 14 et 17 h. Il semblerait que l'algue soit constituée de deux "compartiments" de périodes biologiques différentes. En ce qui concerne le premier compartiment (représentant respectivement, pour le ^{137}Cs et le ^{134}Cs , 36 et 51% de l'ensemble de la cellule), nous pensons qu'il pourrait être attribué à la gangue mucilagineuse de l'algue, mise en évidence par Stachelin et al. (1975, [19]), site d'adsorption du radiopolluant; le second (64% et 49% de l'ensemble cellulaire) s'adresse certainement au niveau cellulaire proprement dit (Figure 3).

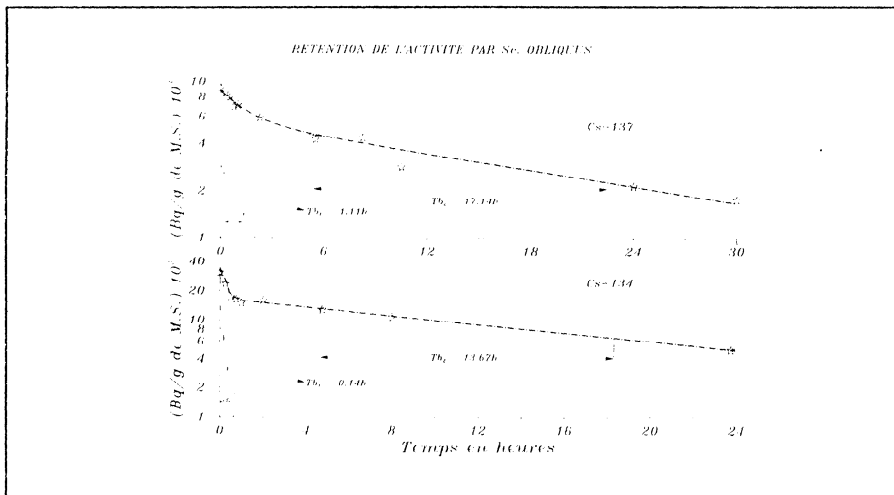


Figure 3: Décorporation comparée du ^{134}Cs et du ^{137}Cs chez Scenedesmus obliquus.

Les cinétiques de décontamination de *S. obliquus* répondent aux équations suivantes :

$$^{137}\text{Cs: Activité en Bq/g sec} = 3117 * (\text{EXP}(-0.6213 * t)) + 5610 * (\text{EXP}(-0.0404 * t))$$

$$^{134}\text{Cs: Activité en Bq/g sec} = 17240 * (\text{EXP}(-4.77 * t)) + 16496 * (\text{EXP}(-0.0507 * t))$$

t en heures

En 24 heures, l'élimination du ^{137}Cs et du ^{134}Cs représente 75.6 et 85.5% respectivement.

Ces résultats sont en accord avec ceux avancés par d'autres auteurs, King (1964) sur *Chlamydomonas* montre que 75% du ^{137}Cs est éliminé en 24 h ($T_b = 4$ h) [16], Van der Ploeg et al., pour les algues unicellulaires, donne un T_b de l'ordre de 1 jour pour l'élimination du ^{137}Cs [20].

3.4 INFLUENCE DE LA TEMPERATURE ET DE LA LUMIERE SUR LA DECORPORATION DU ^{134}CS

L'élimination du radiocésium étant très rapide, nous avons voulu déterminer si ce processus est lié au métabolisme de l'algue. En effet, cette décorporation ne pourrait être due qu'à une diffusion isotopique équilibrant la concentration cellulaire et celle du milieu extérieur. La figure 4 compare l'élimination du radiocésium chez l'algue à 22°C + lumière et à 4°C + obscurité et ce pour deux désorptions successives (Figure 4).

A 22°C + lumière, après 24 h de contact avec un milieu inactif, 30% de l'activité initiale des algues est éliminée à chaque décorporation. On observe également deux périodes biologiques: une rapide (T_b1) comprise entre 0.1 et 0.2 h, l'autre plus lente (T_b2) d'environ 60 h. La rétention du césium répond aux équations suivantes:

$$1^{\text{ère}} \text{ décorporation: } \% \text{retenu} = 7.03 * (\text{EXP}(-5.734 * t)) + 92.32 * (\text{EXP}(-0.011 * t))$$

$$2^{\text{ème}} \text{ décorporation: } \% \text{retenu} = 7.44 * (\text{EXP}(-3.143 * t)) + 61.72 * (\text{EXP}(-0.010 * t))$$

t en heures

A 4°C + obscurité, après 24 h de contact avec un milieu inactif, 16.5% de l'activité initiale des algues est éliminée. Lors de la deuxième décorporation, 5% de l'activité résiduelle de première décorporation est désorbée. Cette différence pourrait s'expliquer par le fait qu'au début de la première désorption, les algues n'étaient pas encore suffisamment adaptées à ces nouvelles conditions expérimentales.

Néanmoins, si on compare l'élimination au niveau de la deuxième phase de décorporation pour les deux traitements, le ralentissement du métabolisme photosynthétique à 4°C + obscurité peut être responsable de 25% de la rétention du césium.

La rétention du radiocésium est donnée par les équations suivantes:

1ère décorporation: %retenu= $5.45*(EXP(-1.386*t))+89.02*(EXP(-0.003*t))$

2ème décorporation: %retenu= $1.58*(EXP(-2.647*t))+81.65*(EXP(-0.001*t))$
t en heures.

Enfin, l'élimination du césium se fait suivant deux processus différents, caractérisés par une période biologique T_{b1} courte d'environ 0.5 h et par une période biologique T_{b2} très longue comprise entre 237 h et 664 h.

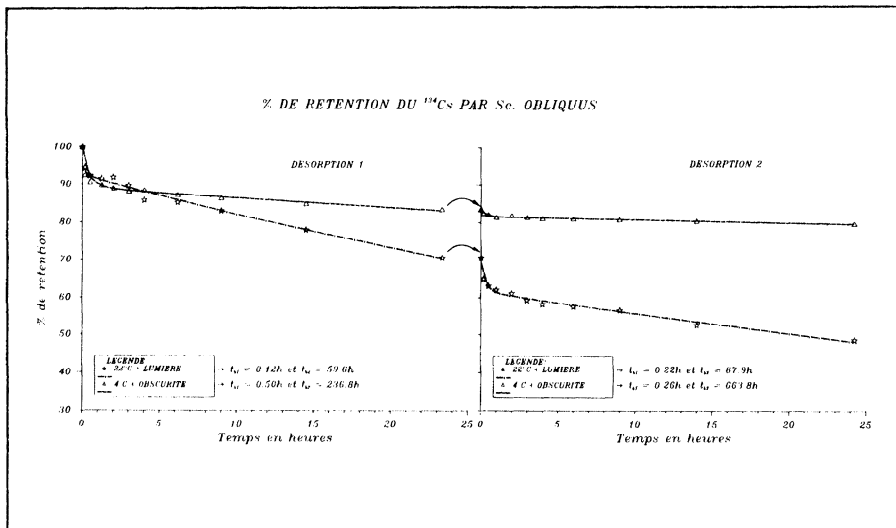


Figure 4: Décorporation du ^{134}Cs chez *Scenedesmus obliquus*, effet de la température et de l'obscurité.

4. CONCLUSIONS

L'utilisation d'une méthode de culture en continu en conditions contrôlées (turbidostat) présente de nombreux avantages par rapport aux méthodes traditionnelles en milieu fini: pas d'épuisement du milieu nutritif, population algale à l'équilibre (steady state), reproductibilité dans le temps de l'état physiologique des algues garantissant ainsi une optimisation des résultats expérimentaux.

La croissance cellulaire de Scenedesmus obliquus est rapide ($t_d = 32h$ dans nos conditions expérimentales) offrant une biomasse intéressante.

L'analyse des F.T. montre que la fixation des radionucléides est fonction de l'élément étudié.

Les processus de décorporation (deux périodes biologiques, $T_{b1} < 1h$ et T_{b2} de l'ordre du jour) sont liés d'une part à un effet de surface (radioélément adsorbé, perdu rapidement) et d'autre part à un mécanisme métabolique (fixation au niveau cellulaire proprement dit). En ralentissant le métabolisme, la rétention du radiocésium est de 25% plus élevée. Les études réalisées montrent que la fixation et la désorption sont rapides. Par conséquent, la radiocontamination de l'algue peut être considérée comme représentative des fluctuations du niveau de contamination radioactive des eaux douces.

Scenedesmus obliquus peut être utilisé comme bioindicateur de la radiopollution dulcicole, conséquence de sa réponse rapide vis-à-vis des conditions qui prévalent dans le milieu naturel.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] GRAY P. and R.J. MUNSON. *Lab. Practice*, 19, 7, (1970), 723-727.
- [2] PREMAZZI G., O. RAVERA and A. LEPERS. A modified turbidostatic system for algal population studies. Contribution n° 1351 of the Biology Programme, D.G. XII of the Commission of the European Communities, 18 pp.
- [3] DE CLERCQ-VERSELE H. et R. KIRCHMANN. L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse: cinq années d'études in situ et d'approche expérimentale. (1976-1980). Rapport BLG 555, (1982), 54 pp.
- [4] KIRCHMANN R.. L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse: études in situ et recherches expérimentales durant la période 1981-1984. Rapport BLG 573, (1985), 48 pp.
- [5] BOURDON H., R. KIRCHMANN, J. BINET, E. FAGNIART et A. COLETTE. Bilan de l'utilisation de cultures d'algues pour la détection des radioéléments présents dans les effluents des installations nucléaires in BONNYNS-VAN GELDER E. and KIRCHMANN R., Role of microorganisms on the behaviour of radionuclides in aquatic and terrestrial systems and their transfer to man. Proc. workshop, Brussels, 25-27 April 1984. UIR - CEC, 285 pp.
- [6] MULLER H.M.. *Planta*, 56, (1961), 555-574.
- [7] COUGHTREY P.J. and M.C. THORNE. Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems. Vol. 2, (1983), 500 pp, A.A. BALKEMA/ROTTERDAM.
- [8] KEARNS P.K. and J.W. RICHARD. *Hydrobiologia*, 88, (1982), 277-280.
- [9] KWASNIK G.M., R.J. VETTER and G.J. ATCHISON. *Hydrobiologia*, 59, 3, (1978), 181-185.
- [10] HEBRARD J.P. et L. FOULQUIER. *Rev. Bryol. et Lichénol.*, 41, 1, (1975), 35-54.
- [11] KIRCHMANN R. et G. CANTILLON. Comportement, en rivière, des radiocobalts et du radiomanganèse d'effluents d'une centrale P.W.R.. Reprinted from *Proc. Int. Symp. Radioecology applied to the protection of man and his environment* (1971), 425-441, EUR 4800 d.f.i.e..
- [12] AMIART-TRIQUET C. et L. FOULQUIER. *Water, Air and Soil Pollution*, 9, (1978), 475-489.

- [13] COUGHTREY P.J. and M.C. THORNE. Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems. Vol. 3, (1983), 372 pp, A.A. BALKEMA/ROTTERDAM.
- [14] COUGHTREY P.J. and M.C. THORNE. Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems. Vol. 1, (1983), 496 pp, A.A. BALKEMA/ROTTERDAM.
- [15] FOULQUIER L. et A. GRAUBY. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, 19, (1975), 2219-2235.
- [16] KING S.F.. *Ecology*, 45, 4, (1964), 852-858.
- [17] PALLY M. et L. FOULQUIER. Synthèse bibliographique sur la capacité et les modalités de la fixation du radiocésium par les végétaux aquatiques. Rapport CEA-BIB-235, (1981), 255 pp.
- [18] SHITZ J.S., E. EVERBEQ et B. COMELIAU. Modélisation du transfert du Cs-137 de l'eau vers le phytoplancton et simulation des expérimentations de laboratoire. Journée d'étude "Transfert des radionucléides en écosystème fluvial", 19 juin 1986, CEN/SCK, HOL. (in press).
- [19] STAHELIN L.A. and J.D. PICKETT-HEAPS. The ultrastructure of *Scenedesmus* (chlorophyceae). I. Species with the "reticulate" or "harty" type of ornamental layer. *J. Phycol.*, 11, (1975), 163-185.
- [20] VAN DER PLOEG H.A., D.C. PARZICK, W.H. WILCOX, J.R. KERCHER and S.V. KAYE. Bioaccumulation for radionuclides in freshwater biota. O.R.N.L.-5002, (1975), 222 pp.

SAMENVATTING.

De fixatie van radioactieve polluenten, typisch voor PWR effluenten, door de groene zoetwater alge *Scenedesmus obliquus* wordt onderzocht bij middel van een doorlopende kweekmethode en onder gecontroleerde omstandigheden (turbidostat). De gevonden transfer factoren zijn 1300, 2000, 40, 16 en 45-55 respectievelijk voor Mn-54, Fe-59, Co-60, Tc-99, Cs-134 en Cs-137. Eliminatie van radiocesium gebeurt in twee afzonderlijke fasen, gekenmerkt respectievelijk door een korte biologische periode van minder dan een uur en een lange periode van ongeveer een dag. Het fotosynthetische metabolisme van de alge is verantwoordelijk voor 25 % van de decorporatie.

ABSTRACT.

The fixation of radioactive pollutants, typical for PWR effluents, by the green soft water algae *Scenedesmus obliquus* is studied by means of a continuous culture method and in controlled conditions (turbidostat). The obtained transfer factors are 1300, 2000, 40, 16 and 45-55 respectively for Mn-54, Fe-59, Co-60, Tc-99, Cs-134 and Cs-137. The elimination of radiocesium occurs in two distinct phases characterized respectively by a short biological period of less than one hour and a long period of the order of one day. The photosynthetic metabolism of the algae accounts for 25 % of the decorporation.

Annales de l'Association Belge de Radioprotection, vol. 12, n°2 - 3 (1987).

MODELISATION DU TRANSFERT DU CS-137
DE L'EAU VERS LE PHYTOPLANCTON ET
SIMULATION DES EXPERIMENTATIONS DE LABORATOIRE

Smitz, J.S., Everbecq, E., Comeliau, B.

Université de Liège
Unité de modélisation
Sart Tilman B5
4000 LIEGE

RESUME

La modélisation du phénomène de contamination/décontamination du système eau/algues SCENEDESMUS par le CS-137 a un double objectif : aider à quantifier les différents processus qui gouvernent la contamination/décontamination des algues, et mettre en évidence l'influence des diverses conditions d'expérimentation.

Le modèle développé est un modèle simple utilisant des équations de conservation pour l'eau, la biomasse algale et le CS-137; il est supposé que le phénomène de contamination est un phénomène d'adsorption.

Le modèle représente de manière très satisfaisante les expériences de laboratoires, et permet d'expliquer certains phénomènes curieux décelés par les expérimentateurs. Le modèle montre que le facteur de transfert à l'équilibre dépend des conditions d'expérimentations, et que ce facteur ne permet donc pas de quantifier de manière absolue le phénomène de radiocontamination.

1. RAPPEL : DESCRIPTION DES METHODES DE CULTURE

1) Culture batch

Un flacon ensemencé et fermé évolue à la lumière. On observe 4 périodes en quelques jours :

- phase de latence où le nombre de cellules est stationnaire;
- phase de croissance exponentielle;
- phase stationnaire de saturation;
- phase de décroissance.

On peut représenter assez bien les 3 premières phases par une loi du type (fig. 1.)

$$n(t) = \frac{n_m}{1 + \exp(\bar{a} - \mu t)} \quad (1.1.)$$

n est le nombre de cellules au temps t

n_m " " à la saturation

n_0 " " initial

$$a = \ln\left(\frac{n_m}{n_0} - 1\right)$$

μ a la dimension d'un taux de croissance (valeur caractéristique voisine de $6 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, soit 0.02 h^{-1}).

Les conditions dans lesquelles se font les cultures nous permettent de fixer de manière assez précises certains paramètres (IHE/CEN, 1980) :

$$n_0 \approx 10^6 \text{ cell/ml} \approx 10^{12} \text{ cell/m}^3$$

$$n_m \approx 10^7 \text{ cell/ml} \approx 10^{13} \text{ cell/m}^3$$

$$p_a \text{ (masse volumique de l'algue fraîche)} \approx 1000 \text{ kg/m}^3.$$

Les premières simulations ont été faites en supposant les cellules "cubiques", c'est-à-dire que si l_0 est la longueur d'une cellule, sa surface s_0 est égale à $l_0 \times l_0$, et son volume v_0 est égal à $l_0 \times l_0 \times l_0$.

Cependant, une représentation "cylindrique" semble mieux décrire les cellules de SCENEDESMUS, leur longueur étant voisine de $8 \cdot 10^{-6}$ m. (IHE / CEN, 1980) (valeurs variant de 7 à $9 \cdot 10^{-6}$ m).

Etant donné qu'en fin de croissance, la biomasse algale fraîche est d'environ 500 g/m^3 pour 10^{13} cellules, le diamètre de ces cellules doit être voisin de $2.8 \cdot 10^{-6}$ m. Ce sont ces valeurs qui seront utilisées dans les simulations.

2) Culture en continu

Le flacon est alimenté en continu par un milieu frais contenant du milieu nutritif (mais pas d'algues), le volume total étant maintenu constant grâce à un exutoire.

Au bout d'un certain temps, un équilibre s'établit : la population continue à croître, mais à cause des termes d'entrée et de sortie (débit d'appoint et débit à l'exutoire), la *biomasse* présente dans le flacon tend vers un état d'équilibre (les cellules continuant à se diviser comme si elles étaient en *phase "exponentielle" de croissance*).

Dans le cas d'une culture en continu, la biomasse des algues peut être représentée par une loi du type :

$$\frac{\partial}{\partial t} n = n (\mu - d) \quad (1.2.)$$

où n est le nombre de cellules au temps t ;

μ est un taux de croissance (S^{-1}); μ n'est pas nécessairement constant : μ diminue lentement au cours du temps, en fonction du vieillissement de la culture et de la dégradation des conditions du milieu de culture;

d est le taux de renouvellement de l'eau dans la culture en continu (S^{-1}).

SIMULATION DU TRANSFERT DU CS-137
 DE L'EAU VERS LE PHYTOPLANCTON
 NOMBRE DE CELLULES SIMULATION 2

$$n(t) = n_m (1/(1 + \exp(a-\mu t)))$$

$$\text{avec } n_m = 10^{13} \text{ cell/m}^3$$

$$n_0 = 10^{12} \text{ cell/m}^3$$

$$a = \ln\left(\frac{n_m}{n_0} - 1\right) = 2.20$$

$$\mu = 0.02 \text{ h}^{-1}$$

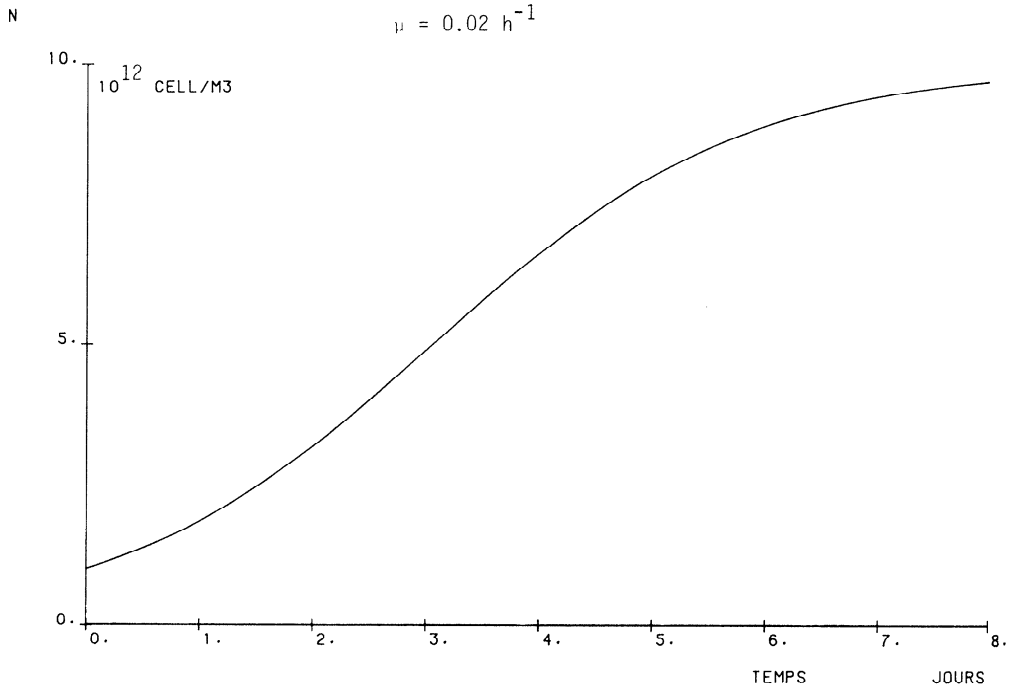


Fig. 1.

2. MODELISATION

Hypothèses

On suppose qu'il s'agit d'adsorption (donc que ce sont uniquement les sites de surface qui interviennent) (Pally, Foulquier, 1984).

L'adsorption sur les algues diminue lorsque le nombre de sites occupés augmente.

Equations1) culture batch

$$n(t) = n_m (1/(1 + \exp(a - \mu t))) \quad (2.1.)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_A = -v_{AB} \cdot C_A \left(1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}}\right)^2\right)^{(*)} + v_{BA} \cdot C_{SB} \cdot n \cdot s_0 \quad (2.2.)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_{SB} = v_{AB} \cdot \frac{C_A}{ns_0} \left(1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}}\right)^2\right)^{(*)} - v_{BA} \cdot C_{SB} - C_{SB} \cdot \frac{1}{n} \frac{\partial}{\partial t} n \quad (2.3)$$

2) culture en continu

$$\frac{\partial}{\partial t} n = n(\mu - d) \quad (2.4.)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_A = -v_{AB} C_A \left(1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}}\right)^2\right)^{(*)} + v_{BA} \cdot C_{SB} \cdot n \cdot s_0 + \frac{D}{V_A} (CA_0 - C_A) \quad (2.5.)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_{SB} = v_{AB} \cdot \frac{C_A}{ns_0} \left(1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}}\right)^2\right)^{(*)} - v_{BA} \cdot C_{SB} - C_{SB} \cdot \frac{1}{n} \frac{\partial}{\partial t} n - \frac{D}{V_A} C_{SB} \quad (2.6.)$$

(*) peut éventuellement être remplacé par un terme de la forme

$$\left(1 - \left(\frac{CSB}{CSB_{max}}\right)\right)$$

avec

$$\left(1 - \left(\frac{CSB}{CSB_{max}}\right)\right) = 0 \quad \text{si} \quad C_{SB} \geq CSB_{max}$$

Il faut mentionner les éléments suivants :

- . Le terme $\frac{1}{n} \frac{\partial}{\partial t}$ n doit être omis s'il est < 0 ; la présence de ce terme montre que la radiocontamination dépend de la manière dont les algues se développent;
- . Lorsque les algues meurent, la biomasse phytoplanctonique morte entre dans un compartiment "matières organiques" (qui n'est pas représenté ici); les radioéléments adsorbés sur ces algues sont supposés non recyclés.

Signification des termes des équations

C_A	radioactivité de l'eau	(B_q/m^3)
CA_0	" initiale de l'eau (ou d'appoint)	(B_q/m^3)
C_{SB}	" surfacique du phytoplancton	(B_q/m^2)
CSB_0	" " initiale (ou d'appoint)	(B_q/m^2)
CSB_{max}	" " maximale du phytoplancton	(B_q/m^2)
CSB_{50}	" " de saturation	(B_q/m^2)
$CMB = C_{SB} \cdot \frac{s_0}{v_0 \cdot p_a}$	radioactivité "massique" du phytoplancton	(B_q/kg)
D	Débit d'appoint à la culture	(m^3/s)
n	nombre de cellules par mètre cube	$(n \text{ cell}/m^3)$
p_a	masse volumique du phytoplancton frais	(kg/m^3)
s_0	surface de la cellule	(m^2)
v_0	volume de la cellule	(m^3)
V_{AB}	vitesse de transfert du Cs-137 de l'eau vers le phytoplancton	(s^{-1})
V_{BA}	vitesse de transfert du Cs-137 du phytoplancton vers l'eau	(s^{-1})
V_A	volume de la culture	(m^3)
d	taux de renouvellement $(= D/V_A)$	(s^{-1})

En fonction de ces définitions, le *facteur de transfert* F (tel que habituellement utilisé) est égal à

$$F = \frac{CMB \times 1000}{C_A} \quad (B_q/kg)/(B_q/l) \quad (2.7.)$$

Au point de vue mathématique, les équations de la culture batch sont en fait les mêmes que les équations de la culture en continu où on fait tendre le débit d'appoint vers zéro. Dans la recherche des états stationnaires (voir ci-après), les deux problèmes seront donc traités simultanément.

Recherche des points d'équilibre

Le point d'équilibre est atteint lorsque les dérivées par rapport au temps s'annulent.

A l'équilibre, on a :

$$0 = -v_{AB} \cdot C_A \left[1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}} \right)^2 \right] + v_{BA} C_{SB} \cdot n_e s_o + \frac{D}{V_A} (CA_0 - C_A) \quad (2.8.)$$

$$0 = -v_{AB} \cdot C_A \left[1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}} \right)^2 \right] + v_{BA} C_{SB} n_e s_o + \frac{D}{V_A} \cdot n_e s_o C_{SB} \quad (2.9.)$$

On voit donc que les concentrations C_A et C_{SB} à l'équilibre dépendent :

- de la concentration initiale dans l'eau (CA_0);
- de la concentration en cellules à l'équilibre (n_e);
- mais aussi, pour la culture *en continu*, du *débit d'appoint* (D).

NB : La recherche de cet état stationnaire est développée au § 3.

Conclusions

Les expériences en laboratoire cherchant à quantifier la radiocontamination des algues à l'aide d'un facteur de transfert négligent généralement

ces 2 termes : - l'influence du débit d'appoint;
- l'influence de la division cellulaire.

La modélisation des expériences de laboratoire montre que les facteurs de transfert tels que calculés traditionnellement sont influencés par ces 2 termes, et *varient donc en fonction des conditions de l'expérience*. Leur représentativité ne peut donc être que relative.

Les paramètres que les expériences tentent de mettre en évidence devraient être des paramètres ne dépendant pas (a priori) des conditions de l'expérience. Les expériences devraient donc être élaborées de manière à déterminer par exemple les vitesses v_{AB} et v_{BA} .

3. RESULTATS DES PREMIERES SIMULATIONS

Les premières simulations ont pour but principal de déterminer, dans l'étude de la radiocontamination du phytoplancton, les avantages respectifs de la culture batch et de la culture en continu.

Il a été montré que la détermination d'un facteur de concentration n'est pas entièrement satisfaisante. Celui-ci dépend en principe des conditions de l'expérience, et est donc difficilement extrapolable. La première chose à faire est évidemment de vérifier ce fait et d'estimer l'importance des conditions d'expérience sur les flux de radiocontamination.

Dans le cas de la *culture en continu*, se pose de plus le problème des conditions initiales. En effet, il y a 3 possibilités :

- 1) Laisser démarrer la culture dans de l'eau contaminée, et alimenter par de l'eau contaminée;
- 2) Lorsque la culture est en phase stationnaire, contaminer uniquement par l'eau d'apport;
- 3) Lorsque la culture est en phase stationnaire, contaminer brusquement l'eau, puis continuer à alimenter avec de l'eau contaminée.

Les simulations décrites ci-après ont pour but essentiel d'estimer l'effet des conditions d'expérimentation. Actuellement, ce modèle n'est pas entièrement *calibré* : les valeurs des différents paramètres sont simplement *estimées* à partir des données existantes.

Les valeurs suivantes sont adoptées :

n, s_0, v_0 voir § 1

$CA_0 \sim 3.7 \cdot 10^7 B_q/m^3$ (ordre de grandeur des concentrations utilisées lors de telles expériences)

$CSB_0 : 0 B_q/m^2$

$CSB_{50} \sim 10^3 (B_q/m^2)$

$\frac{D}{V_A} \sim 6 \cdot 10^{-6} s^{-1}$ (soit $0.02 h^{-1}$)

Estimation de v_{AB}

Si $C_A = 3.7 \cdot 10^7 \text{ B}_q/\text{m}^3$, la vitesse maximale d'assimilation v_{\max} peut être estimée à : $1.0 \text{ (B}_q/\text{kg frais. s)}$ (IHE / CEN, 1984).

Comme $v_{\max} \sim \frac{v_{AB} \cdot C_A}{v_o \cdot n \cdot p_a}$, on obtient

$$v_{AB} \sim 10^{-7}, 10^{-8} \text{ (s}^{-1}\text{)}$$

Estimation de v_{BA}

Les expériences de désorption montrent que la temps caractéristique de désorption est de l'ordre de 10 - 20 h. D'où

$$\begin{aligned} v_{BA} &\sim 0.05, 0.1 \text{ (h}^{-1}\text{)} \\ &\sim 10^{-5} \text{ (s}^{-1}\text{)} \end{aligned}$$

Quelques simulations des expériences de laboratoire ont été réalisées par le modèle décrit ci-avant, en vue de représenter des conditions d'expérience relativement différentes. La comparaison entre les résultats des calculs et les valeurs mesurées expérimentalement est faite essentiellement via la valeur du "facteur de transfert" $((B_q/\text{kg frais})/(B_q/l))$ et son évolution au cours du temps de l'expérience, seules informations disponibles et comparables.

Simulation 1

Hypothèses : cas idéalisé de culture batch avec biomasse algale ayant atteint son état stationnaire (10^{13} cell/m³; masse fraîche 490 g/m³); concentration de l'eau contaminée à l'instant initial : $3.7 \cdot 10^7$ Bq/m³

Résultat de la simulation : le facteur de transfert évolue vers un état d'équilibre atteignant la valeur 6.7 $((B_q/\text{kg frais})/(B_q/l))$ après environ 48 h (fig. 3.1). A l'équilibre, l'activité adsorbée par le phytoplancton est très faible (de l'ordre de 1 %) comparée à l'activité restant dans l'eau (99 %).

Simulation 2

Hypothèses : culture batch avec croissance algale typique (phase de latence, puis phase de croissance "exponentielle", puis phase de saturation); les valeurs suivantes ont été adoptées :

$$CSB_{50} \sim 0.2 \cdot 10^4 B_q/m^2$$

$$v_{AB} \sim 0.6 \cdot 10^{-7} s^{-1}$$

$$v_{BA} \sim 0.2 \cdot 10^{-4} s^{-1}$$

Concentration de l'eau contaminée à l'instant initial : $3.7 \cdot 10^7$ Bq/m³

Résultat de la simulation : (fig. 3.2) : on constate que le facteur de transfert augmente au cours du temps jusqu'à une valeur d'environ 25 $((B_q/\text{kg frais})/(B_q/l))$ après une période de 18 à 24 h, puis diminue jusqu'à atteindre un état d'équilibre après quelques jours. Cette phase

de diminution correspond à la période de croissance rapide des algues. L'état d'équilibre atteint est le même que celui atteint lors de la simulation 1 (facteur de concentration = 6.7).

Ce type de solution correspond bien à ce qui est décrit dans la littérature (voir fig. 2). Dans l'étude IHE/CEN (1984), est mentionné pour des conditions semblables un facteur de transfert de 89 $((B_q/\text{kg sec})/(B_q/l))$; cette valeur, en supposant un rapport poids frais/poids sec de 10, donne un facteur de concentration basé sur le poids frais de 9 $((B_q/\text{kg frais})/(B_q/l))$. La valeur numérique de 6.7 obtenue par le modèle est donc en très bon accord avec l'expérience.

On constate que le flux de déconcentration "phyto-phyto" qu'on peut associer à l'accroissement de surface dû à la division des cellules est souvent de l'ordre de la moitié du flux de décontamination "phyto-eau". Cette simulation, qui ne permet pas de quantifier de manière précise le rapport flux phyto-phyto/flux phyto-eau, permet cependant de conclure que le *flux phyto-phyto n'est pas du tout négligeable* comparé aux autres flux de contamination et de décontamination (fig. 3.2.b.).

Simulation 3

Influence de l'activité initiale dans l'eau.

Hypothèses : culture batch dans les mêmes conditions que dans le cas 2, sauf la concentration de l'eau contaminée à l'instant initial, prise égale à $3.7 \cdot 10^6 B_q/m^3$

Résultat de la simulation : (fig. 3.3) : une concentration initiale réduite d'un facteur 10 montre peu d'effets : l'activité du phytoplancton est également réduite d'un facteur 10, le facteur de transfert restant donc pratiquement inchangé.

Cet effet est expliqué par le rôle peu important que joue le phénomène de saturation. Des expériences complémentaires devraient permettre de représenter ce processus de manière plus précise (détermination plus précise de CSB_{50}).

Simulations 4 et 5

Influence des cinétiques v_{AB} et v_{BA} .

Hypothèses : culture batch dans les mêmes conditions que dans le cas 2, sauf la vitesse de transfert eau-algüe v_{AB} modifiée d'un facteur 2 (simulation 4), ou encore la vitesse de transfert algüe - eau v_{BA} modifiée d'un facteur 2 (simulation 5).

Résultats : modifier d'un facteur 2 la valeur de la vitesse de transfert eau-algüe entraîne une modification d'un facteur 2 du taux de contamination des algües, ce qui est normal puisque le rapport des vitesses de contamination/décontamination change d'un facteur 2. (fig. 3.4.)

Modifier d'un facteur 2 la valeur de la vitesse de transfert algüe-eau modifie de manière inverse d'un facteur 2 la contamination des algües à l'équilibre. Cependant, on constate que la valeur maximale du facteur de concentration n'est pas du tout modifiée dans les mêmes proportions, le flux phyto-phyto atteignant alors le même ordre de grandeur que le flux de décontamination phyto-eau. (fig. 3.5.a et b)

Cette simulation montre l'importance de la détermination expérimentale de la vitesse de décontamination v_{BA} .

Simulation 6

Culture en continu

Hypothèses : culture en continu, débit spécifique de renouvellement : 0.02 h^{-1} ; on suppose que la biomasse algale a atteint son état d'équilibre, et que, à l'instant initial, l'eau est contaminée à une concentration de $3.7 \cdot 10^7 \text{ B}_q/\text{m}^3$, l'eau d'appoint est supposée contaminée à la même concentration.

Résultats obtenus : on constate (fig. 3.6) que le facteur de transfert calculé augmente rapidement jusqu'à atteindre une valeur 5 ($(\text{B}_q/\text{kg frais})/(\text{B}_q/1)$).

Les résultats des expériences de l'étude IHE/CEN (1984) présentaient des facteurs de transfert d'environ 4.5 à 5.0 (rapporté au poids frais). L'accord entre les résultats du modèle et les expériences de laboratoire est donc excellent.

Il est important de mettre en évidence le fait que les facteurs de concentration obtenus grâce aux cultures en continu sont en réalité représentatifs d'une culture en phase de *croissance exponentielle continue*, dont le taux de croissance "stationnaire" est évidemment égal au taux de renouvellement du milieu.

La modélisation réalisée permet de quantifier aisément la valeur relative des facteurs de concentration à l'équilibre dans les cultures en continu par rapport aux valeurs correspondantes obtenues dans les cultures "batch" : dans la culture en continu, le processus d'élimination d'une fraction des cellules algales contaminées est représentée par le terme $-\frac{D}{V_A} \cdot C_{SB}$. La faiblesse relative de la contamination dans une culture en continu dépend sensiblement du rapport entre le flux algues-eau (donc v_{BA}) et le flux algues-algues (donc D/v_A); plus ce dernier flux augmente en comparaison au flux algues-eau, plus la différence de contamination entre culture batch et culture en continu sera grande.

Il serait d'ailleurs possible, en faisant varier le débit d'appoint et en analysant les taux de contamination obtenus à l'équilibre, de vérifier de manière indirecte les valeurs des taux de décontamination.

Simulation 7

Hypothèses : culture en continu, débit spécifique de renouvellement : 0.02 h^{-1} ; on suppose que la biomasse algale a atteint l'équilibre, et que la contamination se fait uniquement à partir de l'eau d'appoint (concentration $3.7 \cdot 10^7 \text{ B}_q/\text{m}^3$).

Résultats obtenus : (fig. 3.7) la simulation montre que la concentration C_A atteint asymptotiquement la valeur nominale (95 % de la concentration limite après 5 jours); par rapport au cas précédent (simulation 6), on constate que la concentration dans les algues tend vers le même état d'équilibre, mais beaucoup plus lentement.

Simulation 8

Hypothèses : on suppose que l'eau est contaminée à une concentration de $3.7 \cdot 10^7 \text{ B}_q/\text{m}^3$ et que l'eau d'appoint est à la même concentration, le taux de renouvellement étant de 0.02 h^{-1} ; on considère que l'inoculum d'algues est injecté dans l'eau contaminée.

Résultats obtenus : (fig. 3.8) les taux de contamination évoluent de la même manière que dans le cas de la simulation 2 (culture batch), les valeurs-limites atteintes étant voisines de celles obtenues dans le cas de la simulation 6 (culture en continu).

Simulation 9

Variation du débit d'appoint

Hypothèses : même situation que celle de la simulation 6, à l'exception du taux de renouvellement qui est diminué d'un facteur 2 (valeur adoptée : 0.01 h^{-1}).

Résultats obtenus : (fig. 3.9) : on obtient le même type de solution que dans le cas de la simulation 6, le facteur de concentration atteint à l'état d'équilibre étant d'environ 5.8 ($(\text{B}_q/\text{kgfrais})/(\text{B}_q/\text{l})$). Pour rappel, le F.C. à l'équilibre obtenu avec un taux de renouvellement de 0.02 h^{-1} est d'environ 5.0 (même unité) - voir simulation 6 - et le F.C. à l'équilibre obtenu avec un taux de renouvellement nul - voir simulation 2 - est d'environ 6.8 (même unité).

On constate donc que la contamination varie de manière inverse en fonction du débit d'appoint, mais pas de manière linéaire.

Etablissement de la relation contamination/débit d'appoint

A partir des 2 équations de l'état d'équilibre de la culture en continu, on obtient, en éliminant C_A :

$$v_{AB} [C_{A_0} - n_e s_0 C_{SB}] \left[1 - \left(\frac{CSB}{CSB + CSB_{50}} \right)^2 \right] = v_{BA} \cdot C_{SB} n_e s_0 + \frac{D}{v_A} \cdot C_{SB} n_e s_0 \quad (3.1.)$$

où n_e est la densité de cellules algales à l'équilibre (cell/m^3).

Les effets de saturation étant faibles à l'équilibre dans les conditions simulées, et la fraction de radioactivité passant dans le plancton petite, on a :

$$\text{i) } 1 - \left(\frac{C_{SB}}{C_{SB} + C_{SB_{50}}} \right)^2 \sim 1$$

$$\text{ii) } CA_0 \gg n_e s_0 C_{SB}$$

on obtient donc

$$C_{SB \text{ stat}} \sim \frac{v_{AB} \cdot CA_0}{n_e s_0 (v_{BA} + \frac{D}{V_A})} \quad (3.2.)$$

En tenant compte que le facteur de transfert F

$$F = \frac{CMB * 1000}{CA} \quad (3.3.)$$

où CMB est l'activité massique (B_q/kg frais)

$$CMB = C_{SB} \cdot \frac{s_0}{v_0 \cdot p_a} \quad (3.4.)$$

on a

$$F \sim \frac{1000 v_{AB}}{p_a (v_{BA} + \frac{D}{V_A})} \quad (*) \quad (3.5.)$$

où $p_a = v_0 \cdot p_a \cdot n_e$ (kg frais/ m^3).

L'équation (*) établit donc la dépendance du facteur de concentration par rapport au taux de renouvellement D/V_A .

Comme mentionné précédemment, cette équation approchée permet également une estimation ou même une vérification indirectes des valeurs numériques des vitesses v_{AB} et v_{BA} .

4. CONCLUSIONS

La modélisation du phénomène de contamination/décontamination du système eau/algues SCENEDESMUS par le Cs-137 a un double objectif :

- 1) aider à comprendre et quantifier les différents processus qui gouvernent la contamination/décontamination (en milieu naturel ou en laboratoire);
- 2) mettre en évidence l'influence des diverses conditions d'expérimentation, en vue de fournir aux expérimentateurs les éléments d'appréciation nécessaires pour pouvoir déterminer les expériences les plus utiles et les plus efficaces.

Le modèle de radiocontamination par le Cs-137 développé au cours du présent travail est un modèle simple, utilisant des équations de conservation pour :

- l'eau,
- la biomasse algale,
- l'activité de l'eau,
- l'activité de la biomasse algale.

Les processus suivants sont incorporés dans le modèle :

- dilution/renouvellement par un débit d'appoint éventuel;
- croissance et mortalité de la biomasse algale;
- transfert de radioéléments de l'eau vers les algues (on suppose que ce phénomène est un phénomène d'adsorption, le flux étant pris proportionnel à la concentration dans l'eau, avec un terme de saturation quand la quantité de sites d'adsorption disponibles sur les algues diminue);
- transfert de radioéléments des algues vers l'eau (flux de décontamination, supposé proportionnel à la surface algale);
- transfert algues-algues (la croissance de la biomasse, par division cellulaire, s'accompagne d'un accroissement des sites de surface disponibles);

- transfert des radioéléments de la biomasse algale morte vers un compartiment "matières organiques détritiques" (non recyclage des radioéléments).

Le modèle est calibré *uniquement* sur base des estimations des différents paramètres qui ont pu être faites à partir des résultats des expériences antérieures et à partir des valeurs citées dans la littérature. Une calibration plus précise est possible, mais elle est superflue actuellement vu les objectifs fixés.

Les principaux résultats obtenus par cette première étude de modélisation et les conclusions qu'on peut en tirer se révèlent particulièrement intéressants :

- 1) il est possible avec un modèle relativement simple comme celui présenté ci-avant de représenter de manière très satisfaisante les expériences de laboratoire; la concordance entre résultats du modèle et valeurs mesurées expérimentalement est excellente. La modélisation permet même d'expliquer et de quantifier certains phénomènes curieux qui avaient été décelés par les expérimentateurs;
- 2) la radiocontamination telle que menée en laboratoire montre la présence d'une phase transitoire évoluant progressivement vers un état d'équilibre; les résultats démontrent que, à l'équilibre, dans les mêmes conditions (biomasse, concentration du substrat, débit d'appoint,...), une population algale atteint le même niveau de contamination finale quelle que soit son passé (conditions initiales, croissance lente ou rapide, ...);
- 3) il est illusoire de vouloir comprendre le phénomène de radiocontamination en se basant uniquement sur la notion de facteur de transfert à l'équilibre, car :
 - les valeurs à l'équilibre dépendent fortement des conditions d'expérimentation (cultures batch ou cultures en continu);
 - des processus essentiels interviennent pendant la phase transitoire;

4) on peut obtenir des informations utiles à partir d'une culture batch, à condition de mesurer régulièrement non seulement les niveaux de contamination, mais également la biomasse algale;

5) dans le cas d'une culture en continu, on peut obtenir une bonne compréhension des processus par un couplage expérimentation/modèle (et on peut notamment obtenir par calcul la valeur numérique des principaux paramètres), pour autant :

- que la méthodologie d'expérimentation permette de s'approcher au mieux du concept de culture en continu (apport continu constant par exemple);
- que la biomasse algale soit mesurée régulièrement;
- qu'on puisse faire varier suffisamment les conditions d'expérience, et notamment le débit d'appoint, sans entraîner la disparition de la biomasse algale.

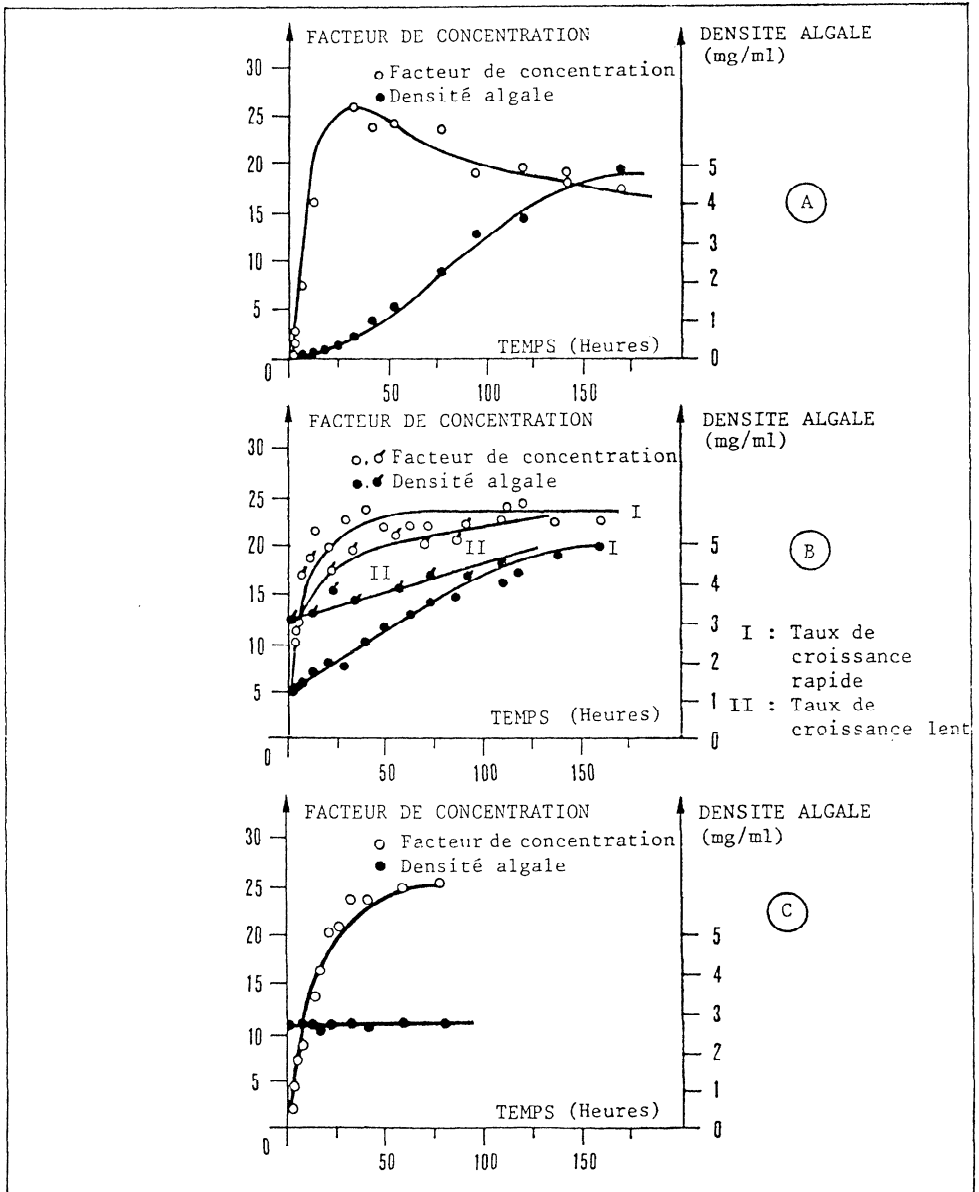


Fig.2 Facteur de concentration du césium 137 (en fonction du poids frais) et densité algale d'*Anabaena variabilis*.

A : Durant la phase totale de croissance

B : Durant la phase linéaire de croissance

C : Durant la phase stationnaire de croissance.

(D'après AOYAMA I., et Coll., 1976)

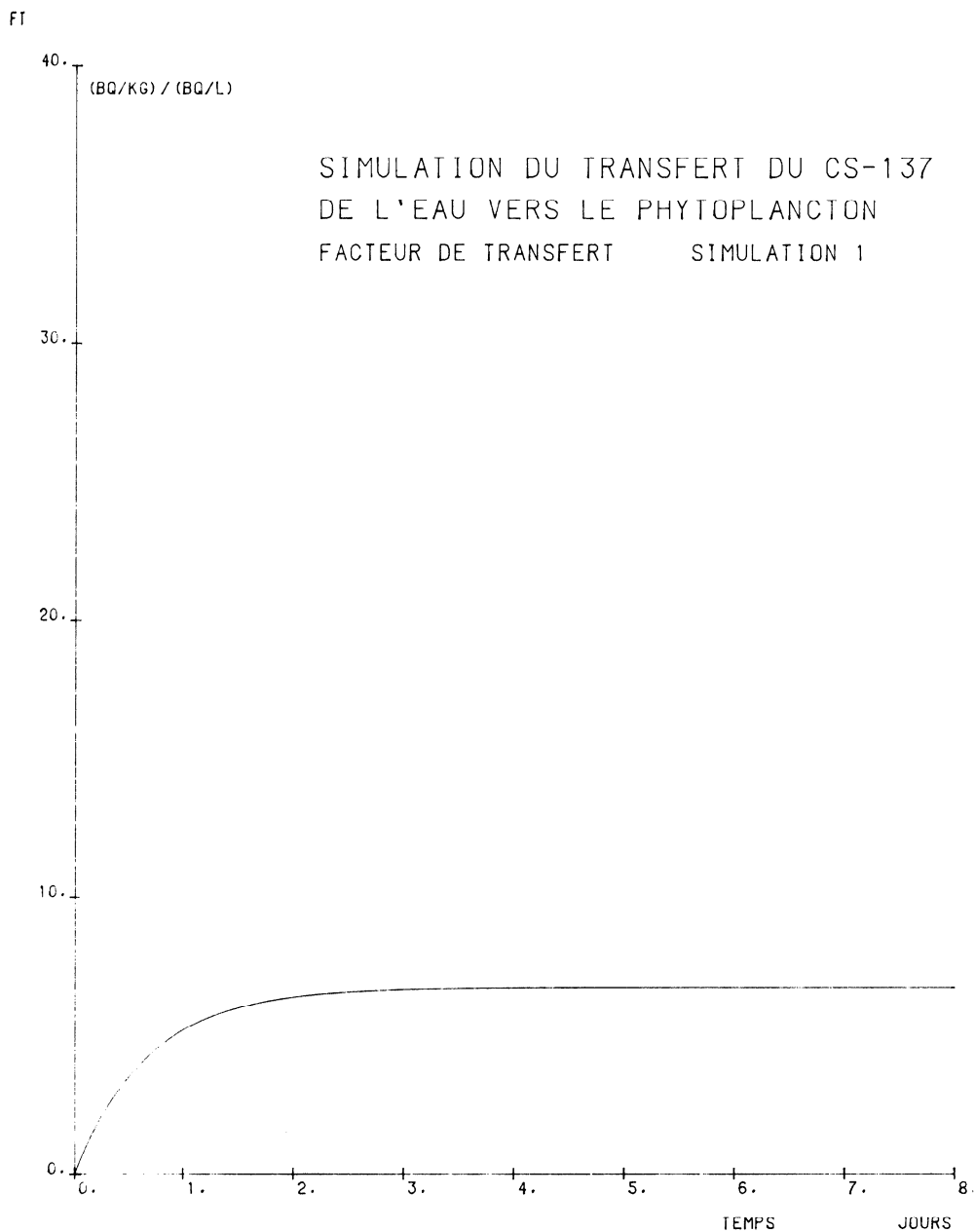


Fig. 3.1.

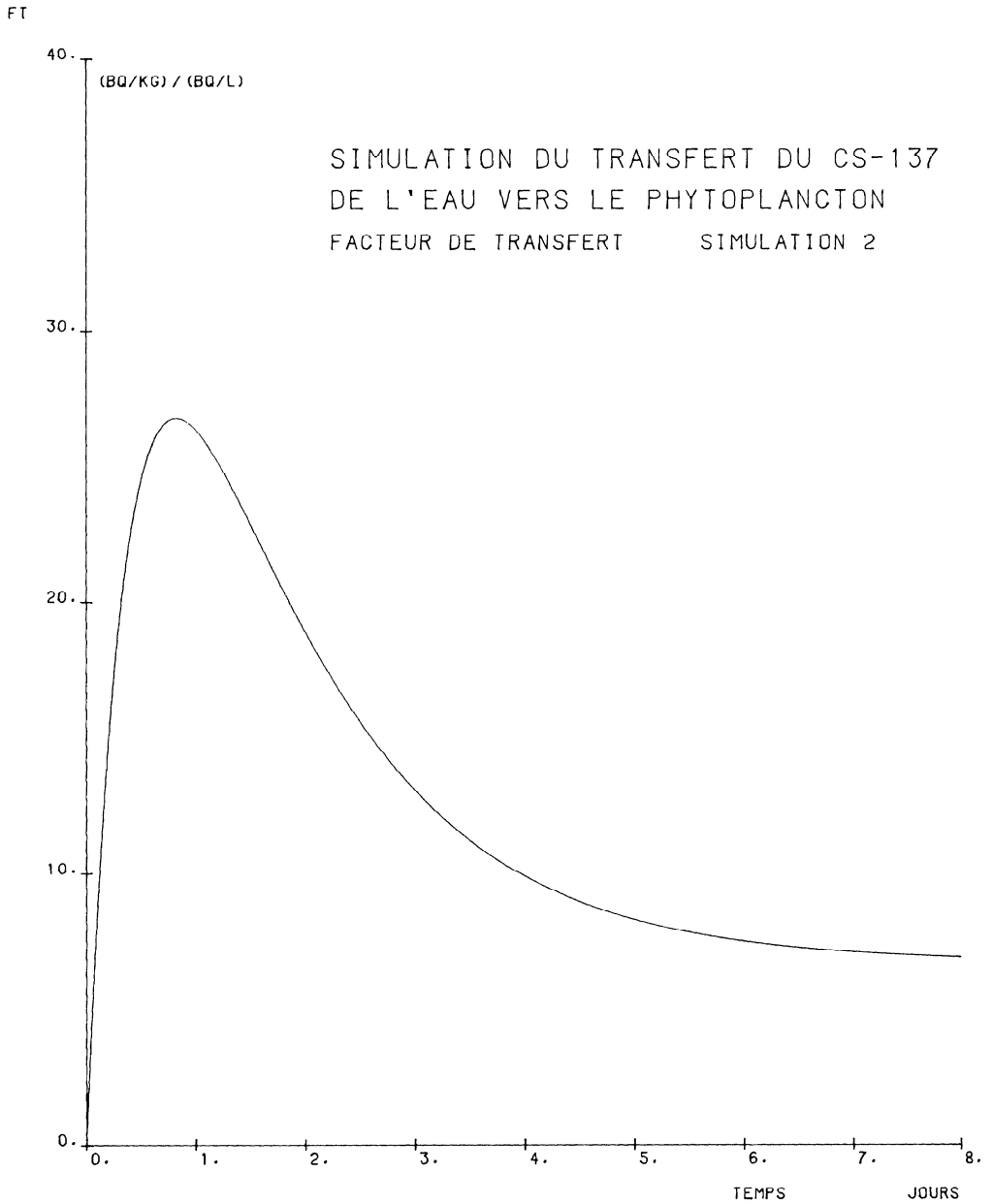


Fig. 3.2.a

SIMULATION DU TRANSFERT DU CS-137
DE L'EAU VERS LE PHYTOPLANCTON
FLUX SIMULATION 2

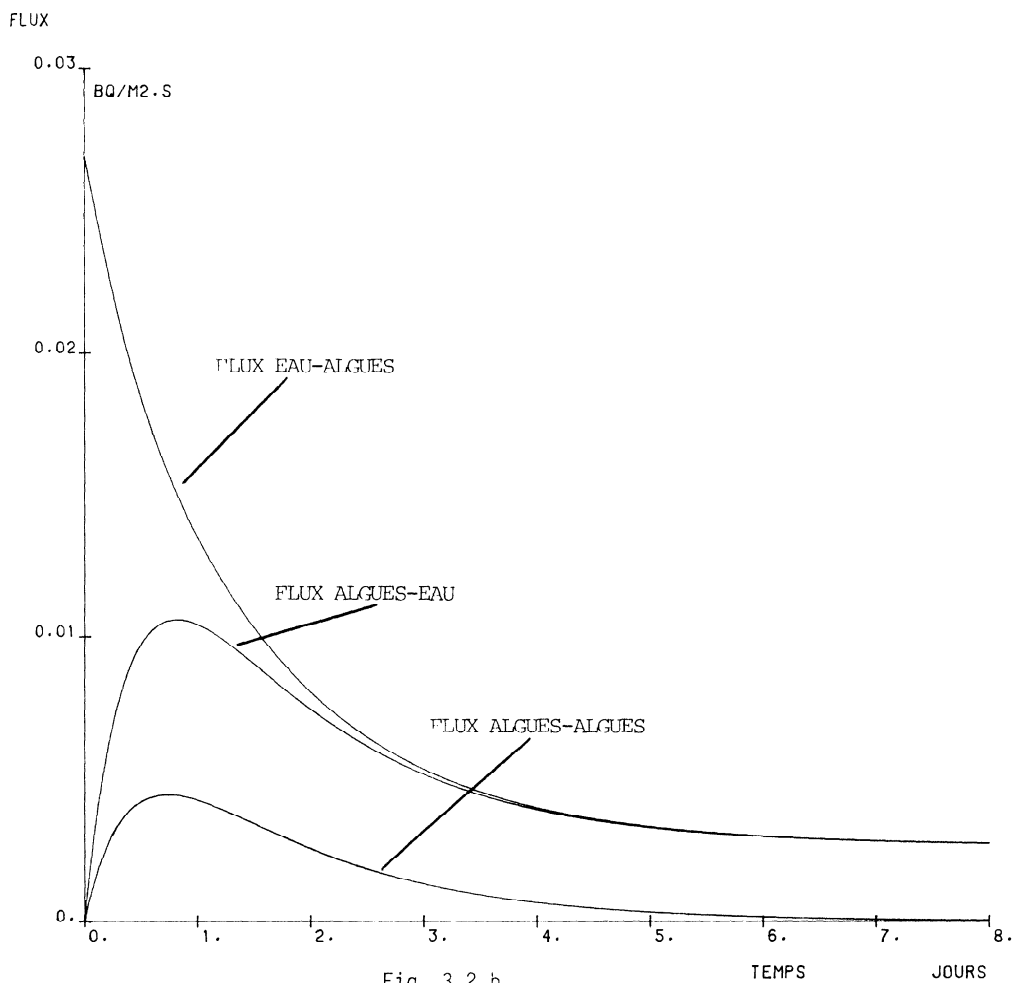


Fig. 3.2.b

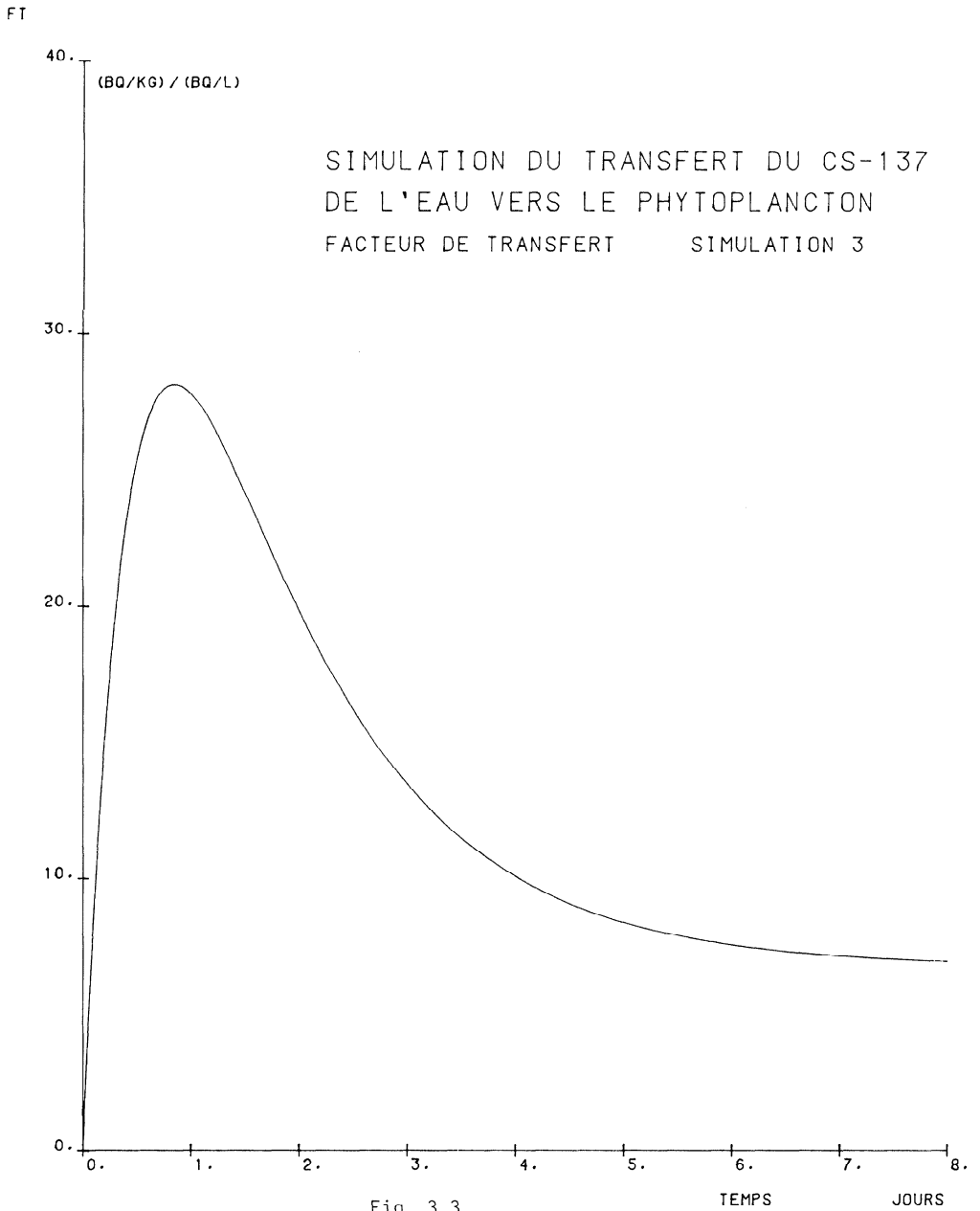
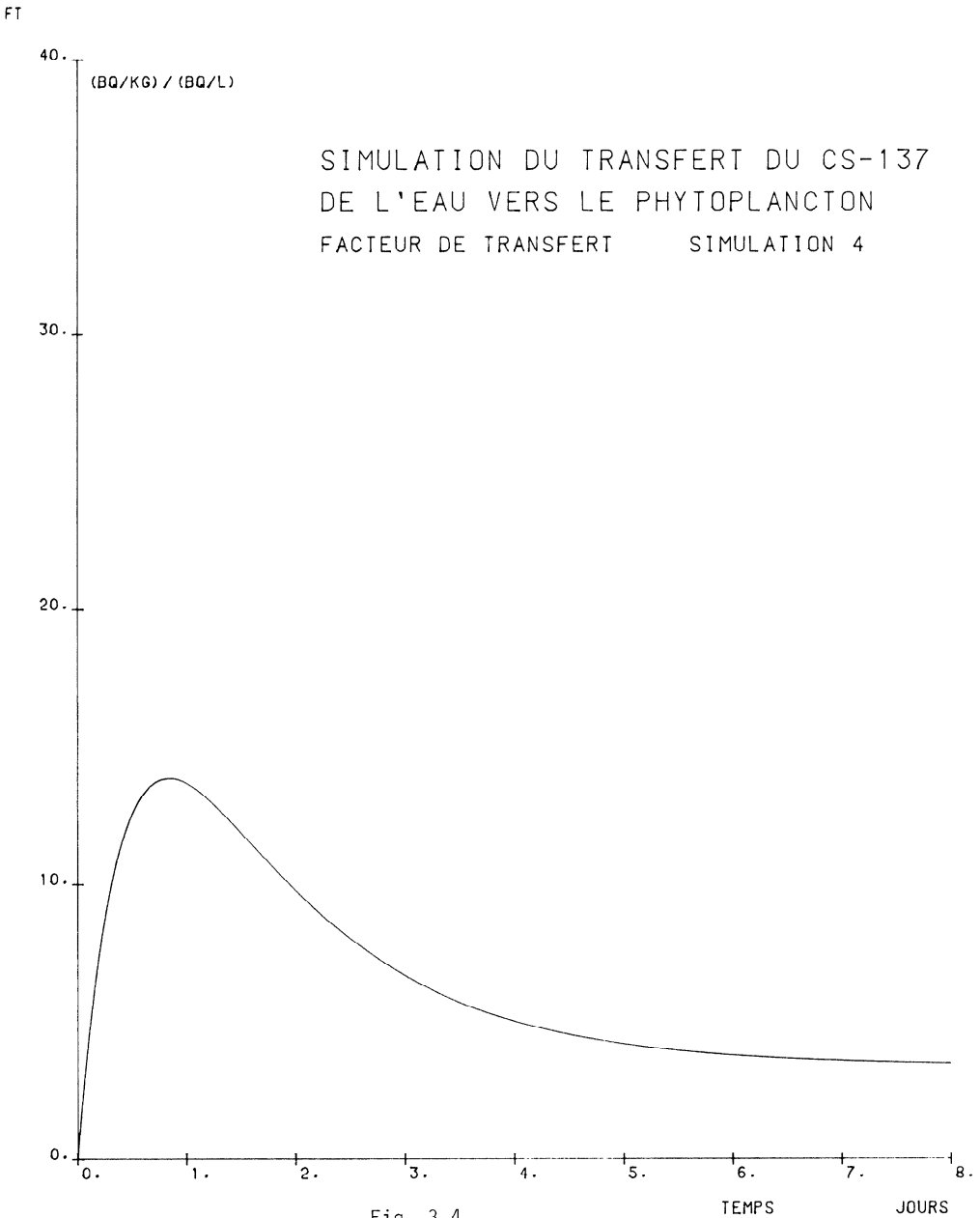
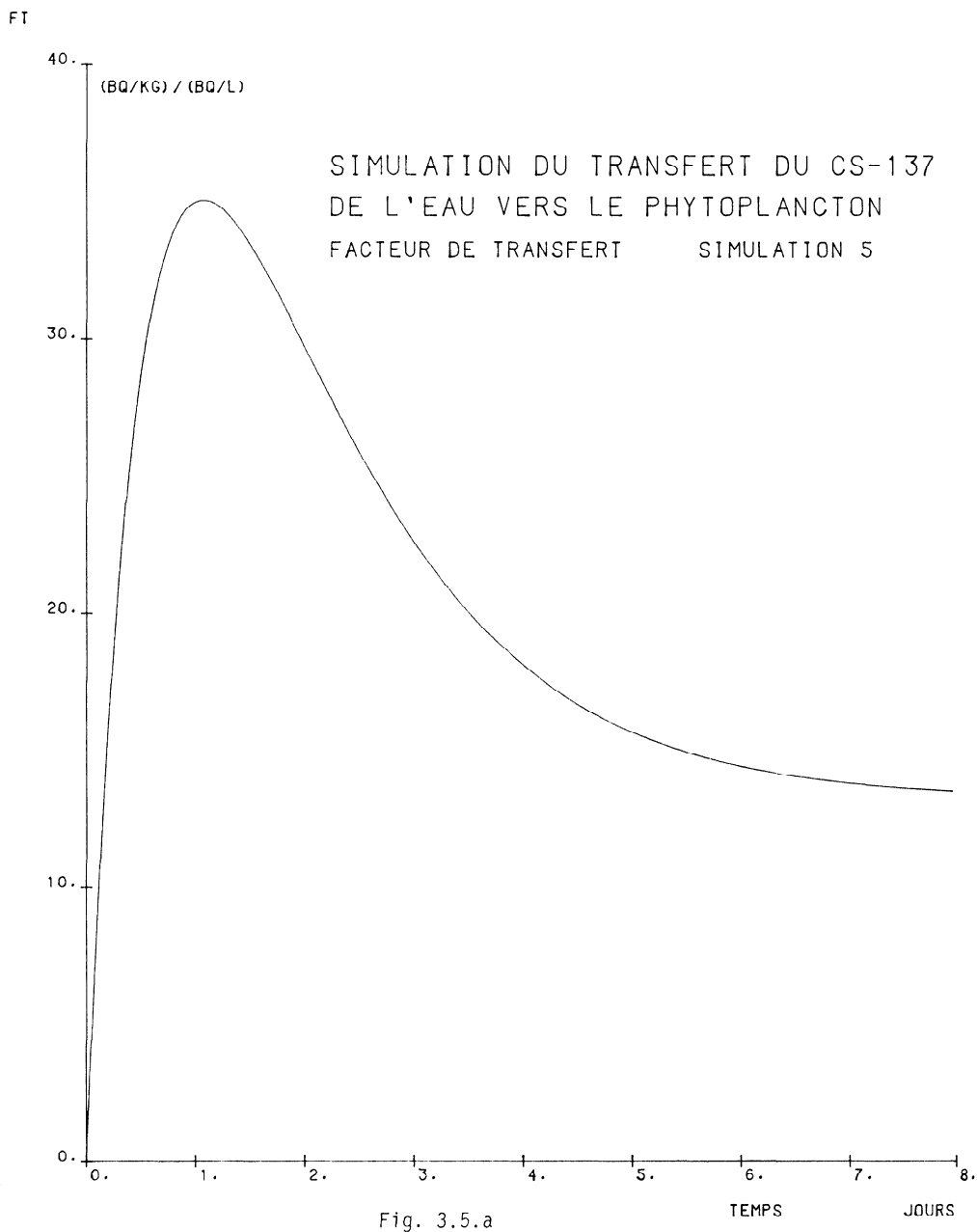


Fig. 3.3.





SIMULATION DU TRANSFERT DU CS-137
DE L'EAU VERS LE PHYTOPLANCTON
FLUX SIMULATION 5

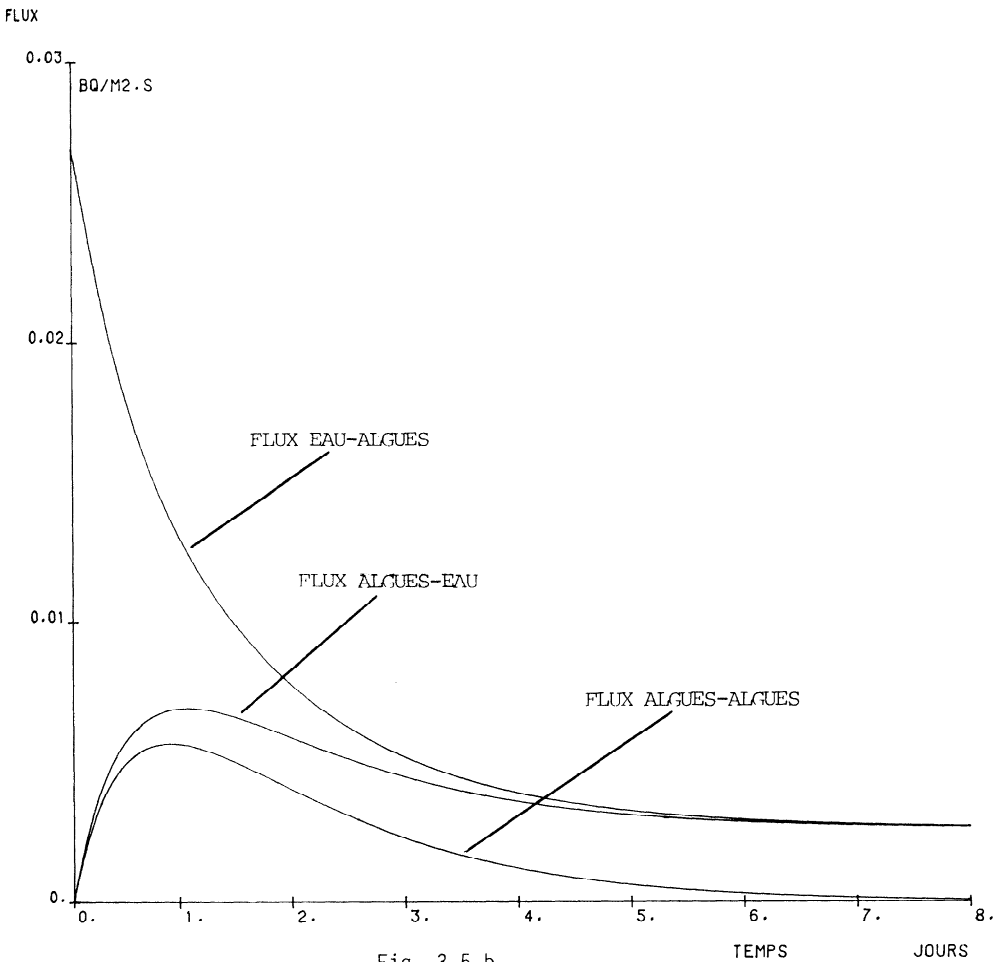


Fig. 3 5.b

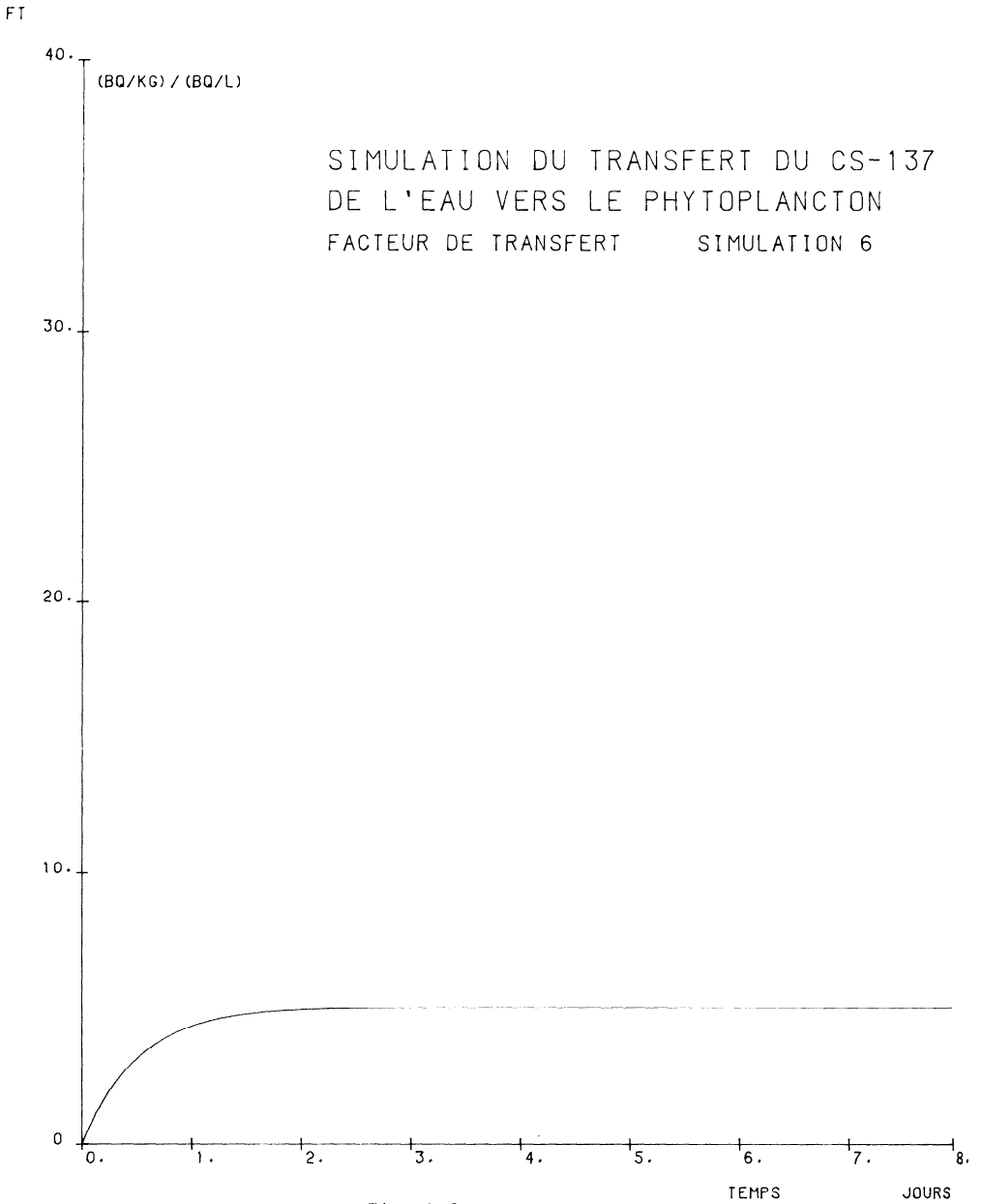


Fig. 3.6.

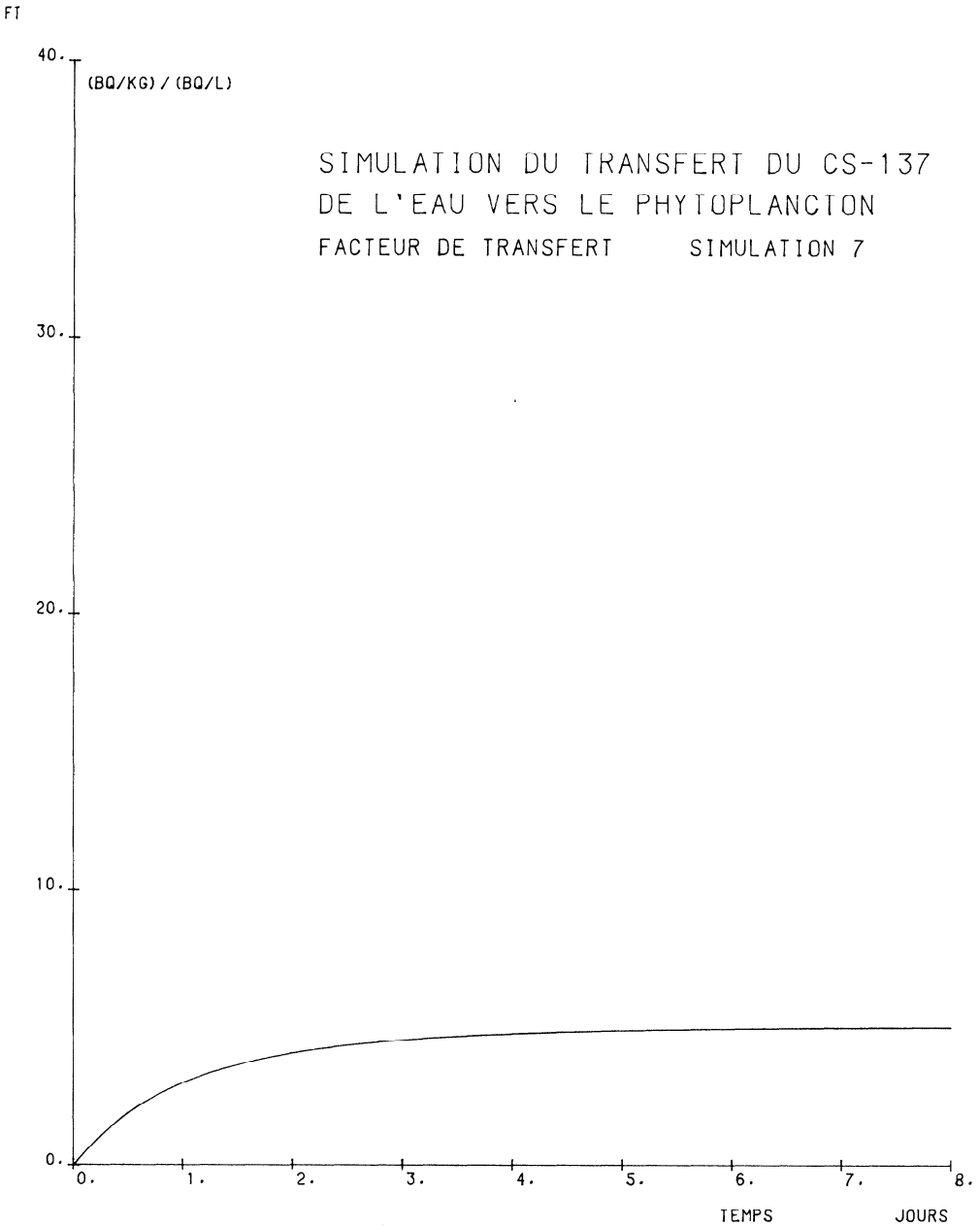
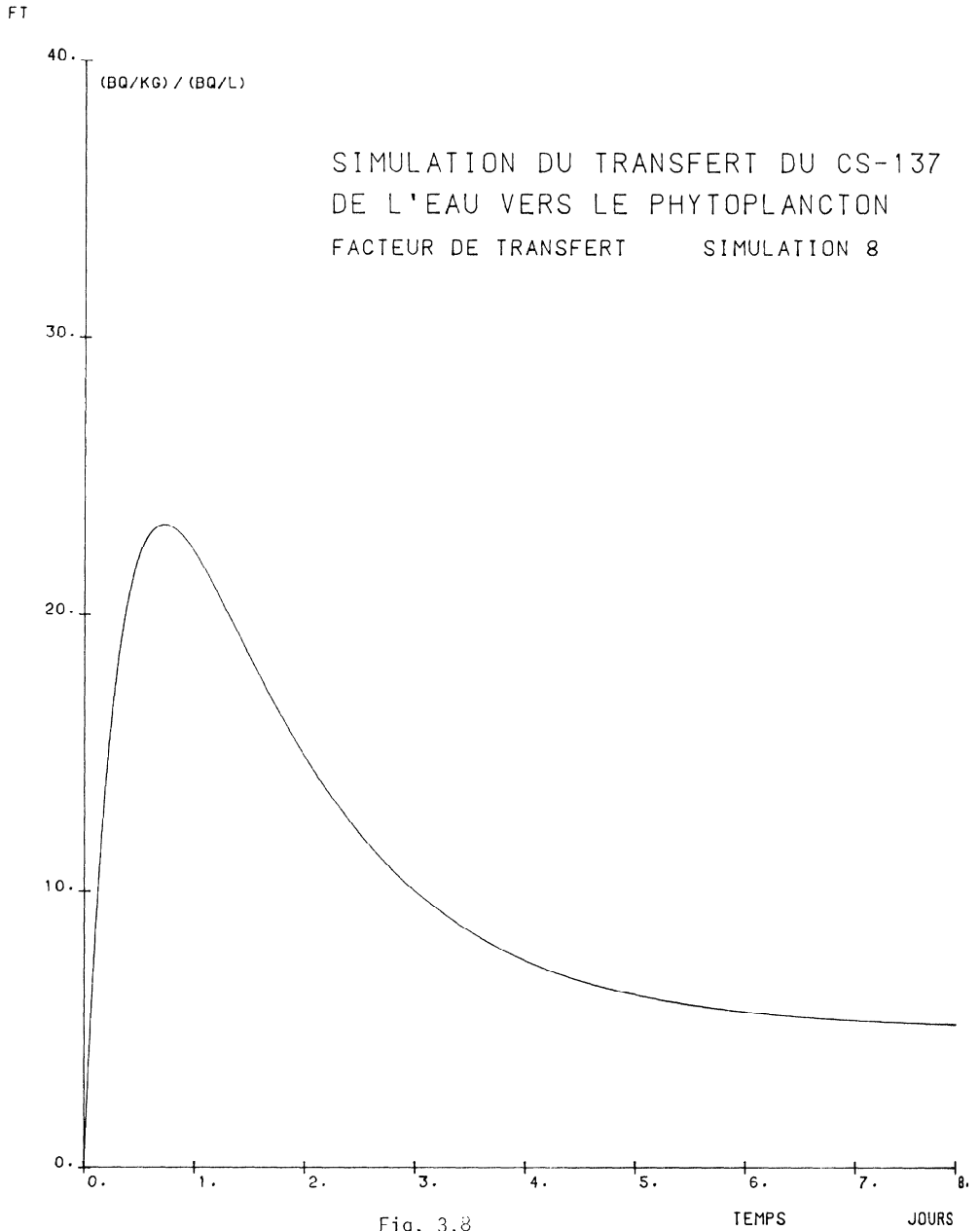


Fig. 3.7.



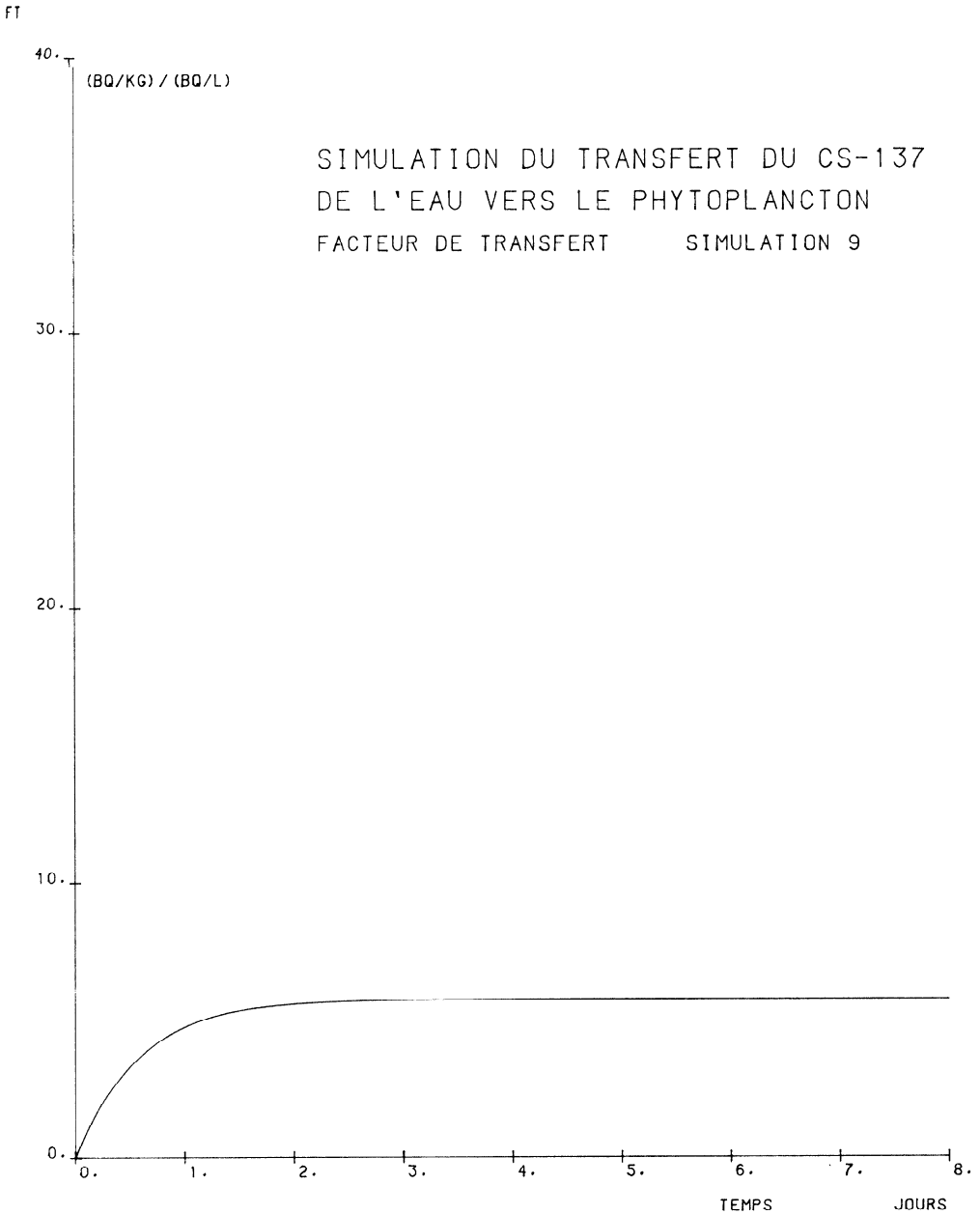


Fig 3.9.

Bibliographie

- AOYAMA I., INOMO K., INOUE Y., 1976, J. Radiat. Res., 1976, 17, 69-81
- BILLEN G., DESCY J.P., EVERBECQ E., SERVAIS P., SMITZ J., 1985, Etude écologique de la Haute Meuse et Modélisation du fonctionnement de l'écosystème aquatique, 250 pp. Ministère de la Région Wallonne pour l'eau, l'environnement et la vie rurale
- BOVARD P., GRAUBY A., FOULQUIER L., PICAT P., 1973, Colloque sur le comportement dans l'environnement des radioéléments rejetés par l'industrie nucléaire. Aix en Provence, France, 14-18 mai 1973, IAEA SM-172/60
- FOULQUIER L., LAMBRECHTS A., 1983, Séminaire sur le transfert à l'homme des radionucléides libérés dans l'environnement par les installations nucléaires. Bruxelles, 17-21 octobre 1983 IAEA-SR-85/29
- FOULQUIER L., PALLY M., 1984, Revue française des Sciences de l'Eau, 3 (1984), 259-277
- IHE/CEN, Etude de l'impact des rejets provenant des centrales nucléaires de type PWR sur la biocénose duciole. 8 volumes (1976-1983)
- JACQUES G., ed., 1979, Phytoplankton : biomasse, production, numération et culture, 107 pp. Ed. du Castillet - 66 000 Perpignan
- JEUNIAUX Ch., LAMBINON J., MICHA J.C., NIHOUL J.C.J., WOLLAST R., 1984, Surveillance écologique de la Meuse en aval du site de Tihange, 357 pp. Ministère de la Région Wallonne pour l'eau, l'environnement et la vie rurale
- KIRCHMANN R., BONNIJS-VANGELDER E., CANTILLON G., Surveillance radiologique des sites d'implantation des centrales nucléaires. Groupe mixte IHE-CEN. 17 volumes (1965-1983)
- LAMBRECHTS A., 1984, Essai de modélisation du transfert du Césium 137 dans les compartiments d'un écosystème simplifié, 188 pp. Thèse Univ. Marseille, Rapport CEA-R-5268
- MEURISSE-GENIN M., REYDAMS-DETOLLENAERE A., MICHA J.C., et KIRCHMANN R., 1983, Séminaire sur le transfert à l'homme des radionucléides libérés dans l'environnement par les installations nucléaires, Bruxelles, 17-21 octobre 1983, IAEA-SR-85/10

- PALLY M., FOULQUIER L., 1981, Synthèse bibliographique sur la capacité et les modalités de la fixation du radiocésium par les végétaux aquatiques, 255 pp. Rapport bibliographique CEA-BIB-235
- PICAT P., DEBEUNS G., MAUBERT H., CARTIER Y., LACROIX D., ANGELI A., DIRAISON J., CAUDOUX B., TEMPIER C., 1980, IIème Symposium International de Radioécologie, CEA-EDF, C.E.N. Cadarache, 19-22 juin 1979, 1980 351-381
- SMITZ J.S., EVERBECQ E., FRERE E., 1985, Modelling of radionuclide transport by sediments in waterways, 3d Meeting CRP Transport and Accumulation of radionuclides in waterways, IAEA, Casaccia, Rome, 1985
- UHLMANN D., 1979, Hydrobiology, 313 pp, John Wiley & Sons, Chichester

SAMENVATTING.

Modelisatie van het verschijnsel besmetting/ontsmetting van het systeem water/algen Scenedesmus door Cs-137 heeft een tweevoudig doel nl : helpen bij het kwantificeren van de verschillende factoren die besmetting/ontsmetting van algen beïnvloeden en de invloed van de verschillende experimentele condities bepalen.

Het ontwikkeld model is eenvoudig en maakt gebruik van bewaringsvergelijkingen voor water, de algen biomassa en Cs-137 ; er wordt verondersteld dat het besmettingsverschijnsel een adsorptie verschijnsel is.

Het model weerspiegelt voldoende de laboratoriumexperimenten en laat toe enkele merkwaardige verschijnselen die ondervonden werden uit te leggen. Het model toont dat de transferfactor bij evenwicht afhankelijk is van de omstandigheden van de proefneming en dat deze factor dus niet toelaat op absolute wijze het verschijnsel van de radiocontaminatie te kwantificeren.

ABSTRACT.

Modelisation of the contamination/decontamination phenomenon of the water/algae Scenedesmus system by Cs-137 has a double purpose : help to quantify the different factors who influence the contamination/decontamination of the algae and to show the influence of the different experimental conditions.

The developed model is simple using conservation equations for water, the algae biomass and Cs-137. It is supposed that the contamination is an adsorption phenomenon.

This model represents satisfactorily the laboratory experiments and explains some curious phenomenons noticed by the experimentators. The model shows that the transfer factor ad equilibrium depends on the experimental conditions and this factor does not allow an absolute quantification of the radiocontamination phenomenon.

Annales de l'Association Belge de Radioprotection, vol. 12, n°2 - 3 (1987).

Transfert du ^{134}Cs dans une chaîne alimentaire d'eau douce simplifiée : eau - algue verte (Scenedesmus obliquus) - mollusque filtreur (Dreissena polymorpha).

**L. Sombré, S. Carraro et C. Myttenaere
Laboratoire de Physiologie Végétale, Place Croix du Sud, 4,
1348 - Louvain-la-Neuve (Belgique).**

RESUME

Dans les conditions naturelles, Dreissena polymorpha peut être radiocontaminé par "prédation" d'une algue telle Scenedesmus obliquus mais aussi par contamination directe par l'eau (radiocésium décorporé par l'algue). En conditions contrôlées il est difficile d'évaluer la contribution réelle de ces deux voies de transfert car l'algue désorbe environ 50% de son activité en une heure. Il est donc nécessaire d'étudier d'une part la contamination globale du mollusque par l'eau et les algues, et d'autre part la contamination directe par l'eau seule. La contribution des algues peut être ensuite déterminée par différence. Les cinétiques d'absorption du radioélément ainsi que l'évolution des facteurs de transfert sont modélisées, le rôle des coquilles et parties molles est quantifié. On met en évidence la prépondérance de la voie de transfert trophique (algue - mollusque) pendant les 30 premières heures d'expérimentation.

1. INTRODUCTION

L'augmentation du nombre des installations nucléaires pose un problème de radioprotection. Les mollusques filtreurs par leur mode de vie et leur métabolisme sont particulièrement intéressants du point de vue de la radiocontamination. En effet, ils se nourrissent de particules en suspension et de microorganismes unicellulaires qu'ils retiennent par une filtration intense de l'eau. Ils constituent ainsi des témoins biologiques révélateurs de l'état de la radiopollution des eaux douces. [1], [2], [3].

Afin de caractériser le transfert du radiocésium dans une chaîne alimentaire simplifiée, le mollusque filtreur *Dreissena polymorpha* et l'algue verte unicellulaire *Scenedesmus obliquus*, tous deux considérés comme bioindicateurs de la contamination radioactive de la Meuse Belge [4], [5], [6], ont été retenus.

Le transfert du radiocésium de l'algue vers le mollusque ne peut être envisagé directement. En effet, *Sc. obliquus* en suspension dans l'eau, désorbe environ 50% de son activité en une heure. *D. polymorpha* peut donc être radiocontaminée par "prédation" de l'algue mais aussi par contamination directe par l'eau (radiocésium décorporé par l'algue).

Afin d'évaluer la contribution réelle de ces deux voies de transfert, il est nécessaire d'étudier d'une part la contamination globale du mollusque par l'eau et les algues, et d'autre part la contamination directe par l'eau seule. La contribution des algues est ensuite déterminée par différence.

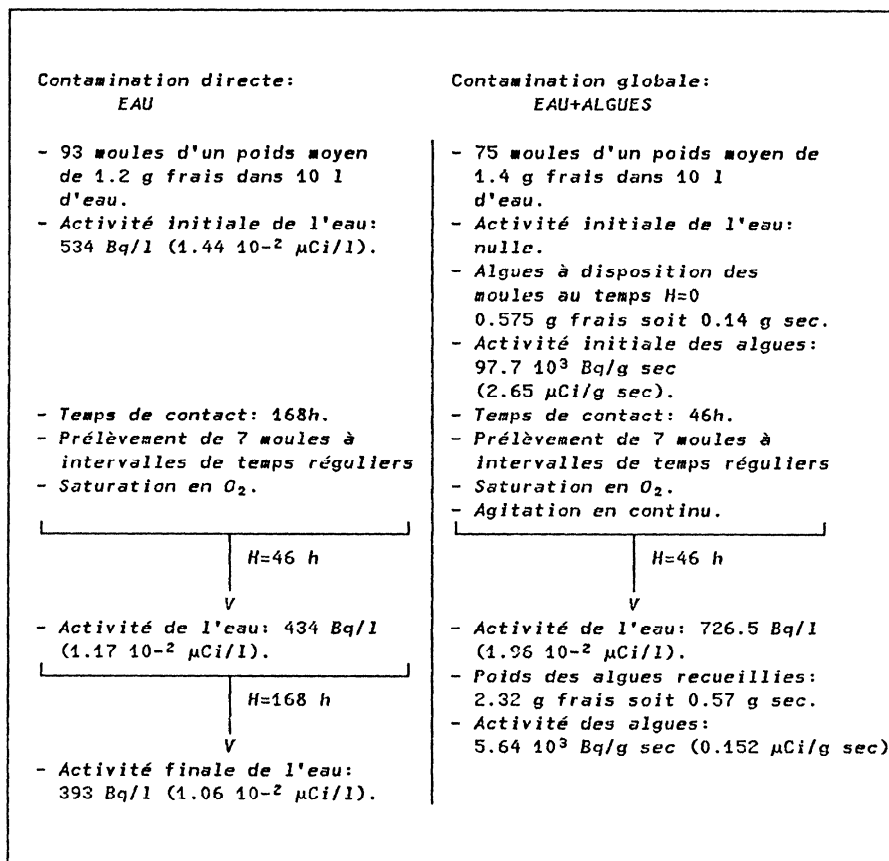
Deux expériences sont donc mises en oeuvre:

1. - expérience de "contamination directe" (transfert eau → mollusque);
2. - expérience de "contamination globale" (transfert eau + algue → mollusque). Dans ce cas, les algues sont apportées en excès en une seule fois au début de l'expérience.

Dans les deux cas, les cinétiques d'accumulation du radiocésium (Cs-134) en fonction de la durée de contact sont décrites pour le mollusque vivant, les parties molles et les coquilles.

Les expressions mathématiques de ces accumulations sont calculées ainsi que celles des facteurs de transfert. La part de l'eau et des algues est déterminée dans la radiocontamination de *D. polymorpha* ainsi que la contribution des parties molles et des coquilles au niveau du mollusque entier.

2. MATERIEL ET METHODES

2.1 CONTAMINATION DIRECTE ET CONTAMINATION GLOBALE.

Les deux systèmes expérimentaux sont supposés identiques quant au comportement du césium libre dans l'eau (apporté directement dans la contamination directe; résultat de la décorporation des algues dans la contamination globale).

2.1.1 Composition du mollusque

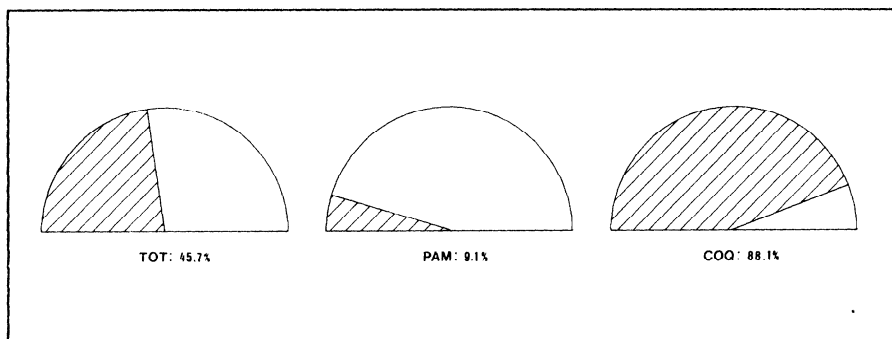


Fig.1.: Rapport entre le poids sec et le poids frais des différentes composantes de *Dreissena polymorpha*: mollusque entier (TOT), parties molles (PAM) et coquilles (COQ).

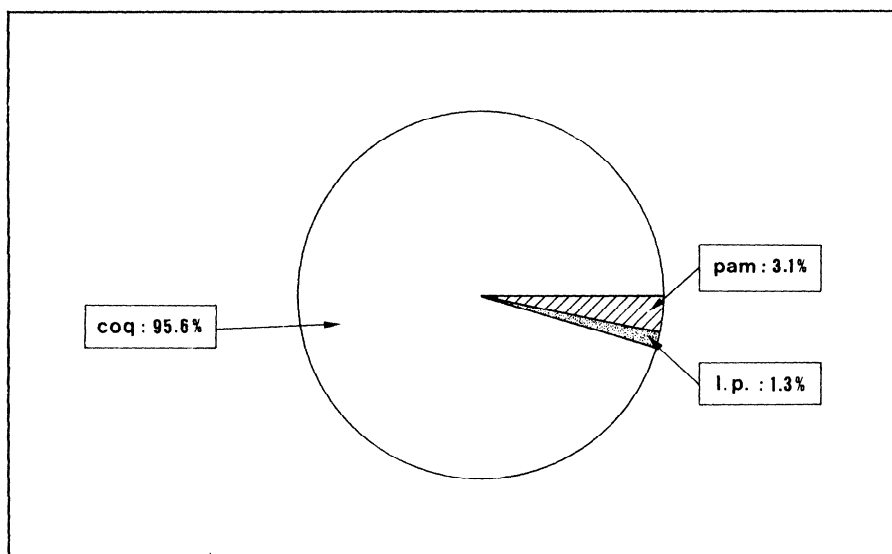
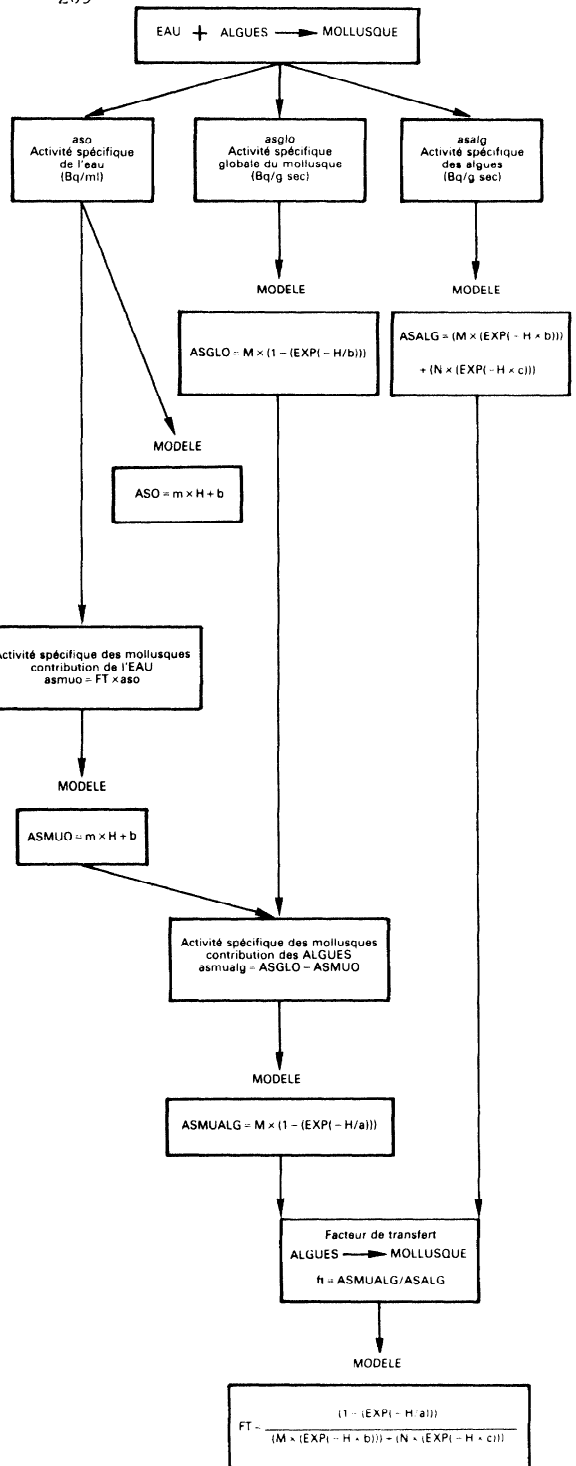
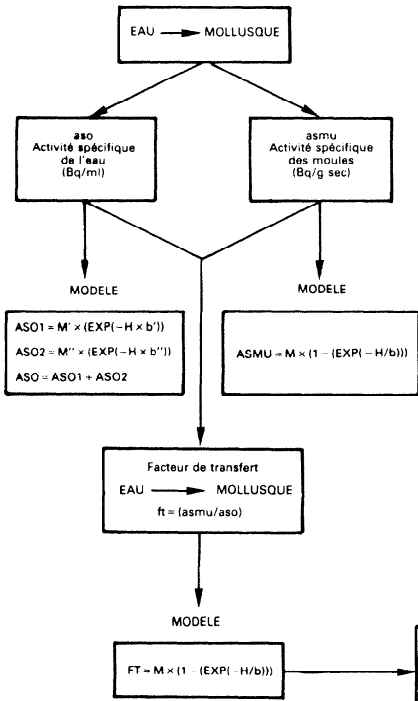


Fig.2.: Répartition en poids sec des différentes composantes d'un mollusque entier: parties molles (PAM), coquilles (COQ) et liquide palléal (L.P.).



2.2 ORGANIGRAMME DE TRAITEMENT DES RESULTATS

Pour chaque temps de prélèvement:

- 7 moules sont retirées du milieu pour en déterminer le niveau de radiocontamination "in vivo" (auto-gamma scintillation spectrometer PACKARD Na-I). L'activité des coquilles et parties molles est mesurée après dissection, séchage (105 °C, 24 h) et pesées.

- Dans le cas de la contamination globale, 60 ml de suspension sont prélevés et centrifugés (24000 g, 15 minutes). Les activités de 10 ml de surnageant et du culot sont alors évaluées.

- L'activité de l'eau dans le cas de la contamination directe, est obtenue sur base d'une aliquote de 10 ml.

- Les données expérimentales sont traitées suivant l'organigramme décrit page 5 et ce en considérant les 3 composantes:

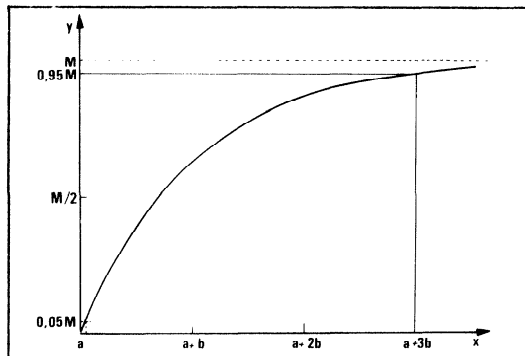
1. moule totale "in vivo" - TOT -
2. coquilles - COQ -
3. parties molles - PAM -.

2.3 METHODE STATISTIQUE.

Les modèles sont élaborés grâce au logiciel d'analyse statistique SAS (Statistical Analysis System). Les régressions non-linéaires (NLIN) sont obtenues par un processus itératif sécant du type DUD (Ralston M.L. and Jennrich R.I., 1978) [7]

Les modèles non-linéaires dérivent d'une expression du type MITSCHERLICH:

$$y = M * (1 - (\text{EXP}(-(x-a)/b)))$$



Dans notre cas, cette équation devient: $y=M*(1-(EXP(-x/b)))$

y = Activité
 x = Temps en heures.

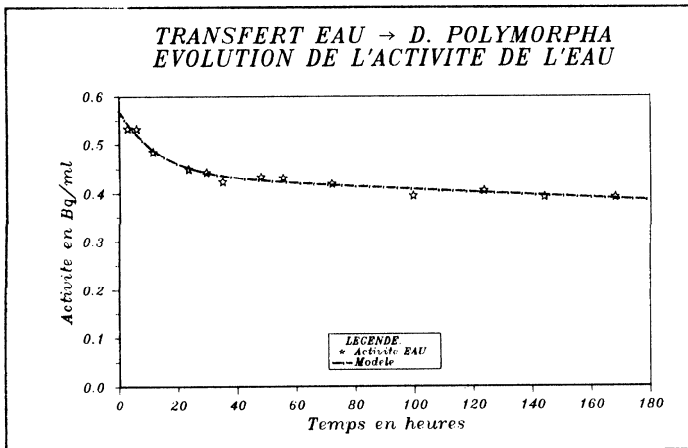
L'intérêt biologique du modèle réside dans le fait que le coefficient b est un paramètre sensible à la vitesse d'accumulation du radionucléide. Le paramètre M représente l'activité à l'équilibre de l'organisme étudié.

Dans le cas des modèles linéaires, la méthode statistique utilisée est du type régression linéaire au sens des moindres carrés (RSQUARE).

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1 CONTAMINATION DIRECTE

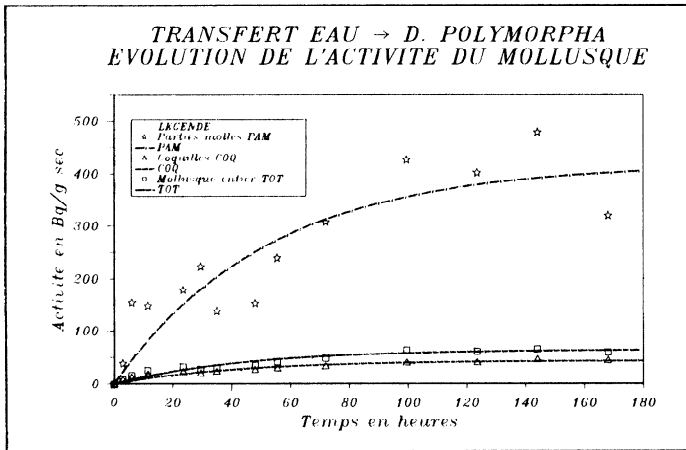
L'activité de l'eau décroît de façon exponentielle. 32% de l'activité initiale disparaît en 7 jours, avec une diminution de 21% le premier jour (66% de la perte totale). (Graph. 1). Cette décroissance de l'activité dans l'eau est due au transfert du radiocésium vers *D. polymorpha*. En effet, chez ce mollusque filtreur, les taux horaires de filtration peuvent atteindre 50 à 180 ml/h [8]. L'évolution des teneurs en césium de l'eau reflète celle observée chez les mollusques (Graph. 2) où on met en évidence une prise d'activité répondant à une exponentielle positive.



Graph. 1: Evolution de l'activité de l'eau (Bq/ml) en fonction du temps (heures); $ASO=ASO1+ASO2=0.438*(EXP(-68.7*10^{-5}*H))+0.133*(EXP(-77.6*10^{-3}*H))$.

3.2 TRANSFERT EAU --> MOLLUSQUE

Les niveaux d'activité des coquilles et des mollusques entiers sont du même ordre de grandeur (40-60 Bq/g sec). Par contre, l'activité des parties molles est supérieure d'un facteur 10 à 7 jours (Graph. 2). Ces résultats sont tout à fait semblables à ceux obtenus par Averguès et al. [3] sur *Anodonta cyanea* (L.) où les activités atteintes par les parties molles du mollusque, pour une activité de l'eau comprise entre 0.5 et 1 Bq/ml, sont de l'ordre de 350 Bq/g sec; les coquilles accumulent environ de 50 à 100 Bq/g sec. Bovard et al. [2], chez *Unio raquieni* Michaud, avec une activité de l'eau de 0.7 Bq/ml, obtient à l'équilibre 300 Bq/g sec pour la masse musculaire et 10 Bq/g sec pour les coquilles. Les valeurs d'activité plateau sont atteintes en 7, 6 et 5.5 jours respectivement pour PAM, TOT et COQ (Tab. 1).



Graph. 2: Evolution de l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha* -ASMU- (Bq/g sec) en fonction du temps (heures).

$$ASMU = M * (1 - (EXP(-H/b)))$$

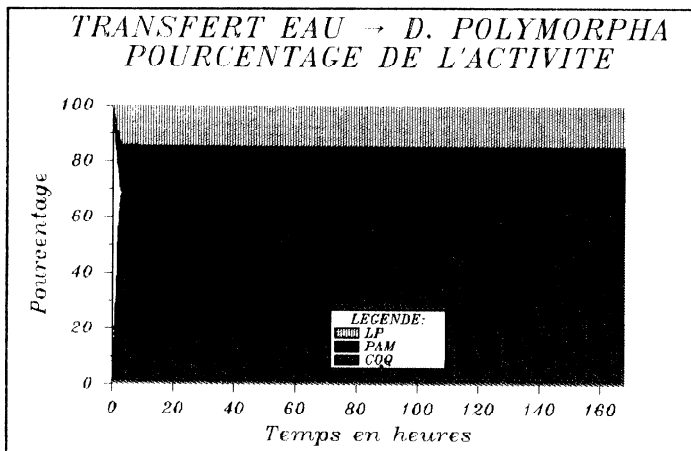
COMPOSANTE	M	Dev. stand. M	b	Dev. Stand. b	Corr.
TOT	64.93	3.197	43.99	5.774	0.8182
COQ	43.99	1.939	41.55	5.017	0.8038
PAM	419.29	54.984	52.53	16.863	0.8616

Tab. 1: Paramètres de l'équation d'accumulation du Cs-134 (Bq/g sec) par *Dreissena polymorpha* en fonction du temps (heures), pour les composantes: mollusque entier (TOT), coquille (COQ) et parties molles (PAM).

L'analyse des coquilles vides peut être suffisante pour avoir une appréciation de la radiocontamination globale de *Dreissena polymorpha*. En effet, leur niveau d'activité est du même ordre de grandeur que celui du mollusque entier. Les coquilles jouent ainsi un rôle de bioindicateur de l'activité du milieu, comme l'ont montré Foulquier et al., la fixation du césium sur les coquilles semble n'être qu'un simple phénomène d'adsorption lié au développement de microorganismes sur les parois. [9].

Par contre, les parties molles qui sont assimilables ont un rôle d'autant plus important qu'elles atteignent un niveau d'activité supérieur d'un facteur 10 à celui des coquilles et à celui du mollusque entier. (Graph. 2).

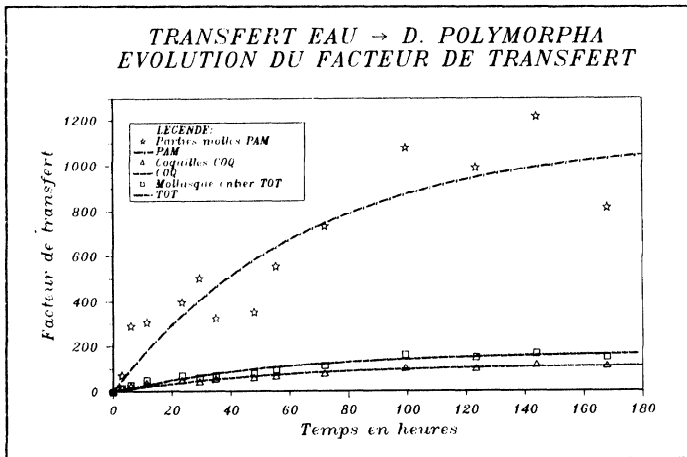
Si on considère le mollusque entier (Graph. 3), l'activité des parties molles représente environ 19% et celle du liquide palléal 15% de l'activité totale (à 7 jours). Ainsi, 34% au moins de l'activité de *Dreissena polymorpha* est susceptible d'être intégrée directement à la chaîne alimentaire. De plus, le césium fixé sur les débris de coquilles présents dans le tractus digestif des poissons prédateurs peut être éventuellement relâché au niveau du système digestif et là, être disponible pour s'intégrer à la chaîne trophique.



Graph. 3: Répartition du pourcentage de l'activité de *Dreissena polymorpha* entière pour ses différentes composantes: coquilles (COQ.) parties molles (PAM.) et liquide palléal (L.P.).

3.3 FACTEUR DE TRANSFERT EAU --> MOLLUSQUE

Le facteur de transfert, pour le mollusque entier et les coquilles, est de l'ordre de 100. Il atteint un niveau supérieur d'un facteur 10 pour les parties molles (Graph. 4, Tab. 2). Ces données sont en accord avec celles relevées dans la littérature [2], [3]. L. Foulquier propose pour les bivalves d'eau douce des valeurs moyennes de référence de 40 pour les coquilles et de 500 pour les parties molles, [10]. Harvey R.S. en 1967 chez *Lampsilis radiata* obtient des facteurs de transfert de 220 pour les parties molles et 25 pour les coquilles (étude en conditions naturelles dans un petit cours d'eau radiocontaminé en Cs-137), [11].

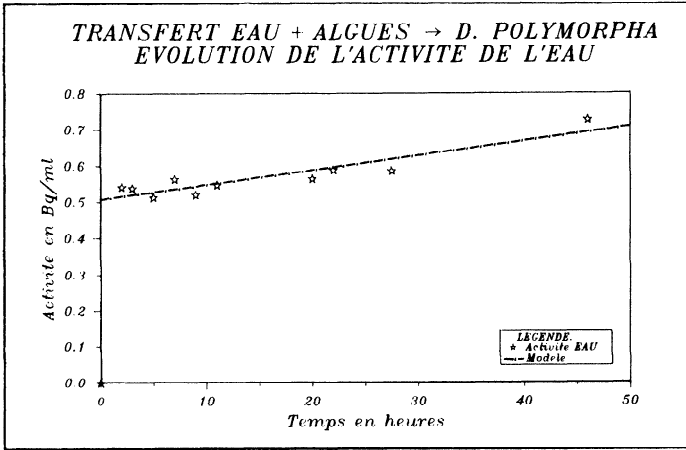


Graph. 4: Evolution du facteur de transfert (sur base des poids secs) de l'eau vers les différentes composantes de *Dreissena polymorpha* en fonction du temps (heures).

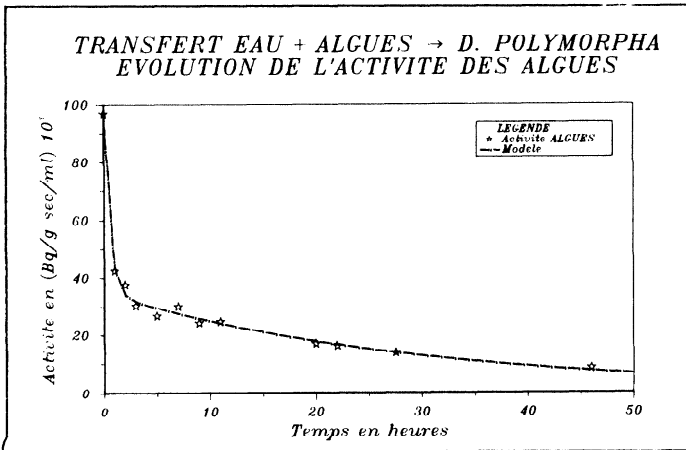
$$FT = M * (1 - (\text{EXP}(-t/b)))$$

COMPOSANTE	M	Dev. stand. M	b	Dev. Stand. b	Corr.
TOT	171.98	9.735	55.92	7.537	0.8754
COQ	117.38	5.911	54.59	6.622	0.8700
PAM	1115.25	171.896	65.13	22.165	0.9062

Tab. 2: Paramètres de l'équation du facteur de transfert du Cs-134, de l'eau vers *Dreissena polymorpha* en fonction du temps (heures), pour les composantes: mollusque entier (TOT), coquille (COQ) et parties molles (PAM).

3.4 CONTAMINATION GLOBALE

Graph. 5: Evolution de l'activité de l'eau (Bq/ml). $ASO=0.0040 \cdot H+0.507$
R=0.92.



Graph. 6: Evolution de l'activité des algues (Bq/g sec).
 $ASALG=62198.2 \cdot (\text{EXP}(-H \cdot 1.846)) + 34813.12 \cdot (\text{EXP}(-H \cdot 0.0335))$.

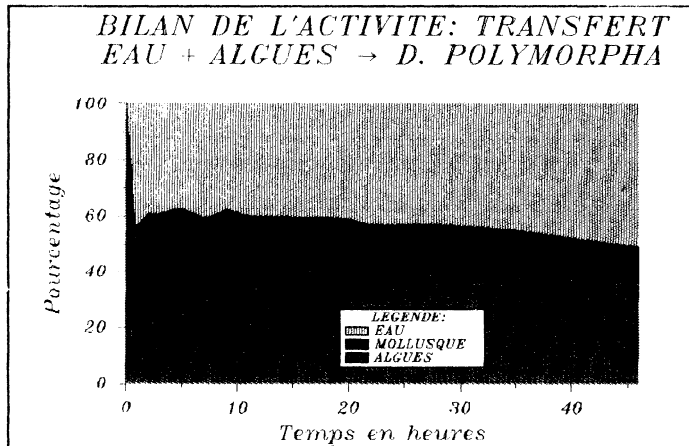
L'activité de l'eau, due uniquement à la décorporation des algues, augmente très rapidement pendant la première heure, où elle atteint 74% de son activité maximum. Elle augmente ensuite lentement et de façon linéaire jusqu'en fin d'expérience (Graph. 5).

L'évolution de l'activité des algues (Bq/g sec contenu dans 1 ml de suspension), suit une loi exponentielle négative, 74.3% de l'activité disparaît en 10 heures. A 46 heures, on n'observe plus que 7.7% de l'activité initiale (Graph. 6). La même évolution est constatée par King (1964, [12]) sur *Chlamydomonas*, par Van der Ploeg et al. (1975, [13]) sur les algues unicellulaires et par Pally et Foulquier (1981, [14]).

Cette diminution résulte de deux phénomènes: l'échange du radiocésium entre l'eau et les algues ainsi que la dilution isotopique du radioélément conséquence de la multiplication de *Scenedesmus obliquus*. En effet, en 46 heures, le poids des algues passe de 0.14 g sec à 0.57 g sec, ce qui traduit un temps de dédoublement t_d de 23 heures. (Graph. 6). Ce dernier traduit le fort pouvoir de multiplication de *S. obliquus* comme l'ont montré différents auteurs qui avancent des temps de dédoublement variant de 24 à 48 heures, [15,16].

Le bilan de la répartition de l'activité au cours de l'expérience (Graph. 7) nous permet de visualiser la perte d'activité des algues (décorporation) très importante pendant la première heure (de 100 à 46.6%) ainsi que l'augmentation de celle de l'eau et la prise d'activité par les mollusques (43.6 et 9.76% respectivement).

Le gain d'activité chez les mollusques est plus important pendant les 10 premières heures (de 9.7 à 26.0%). Il tend ensuite à diminuer lentement (11.4 à 46 heures).

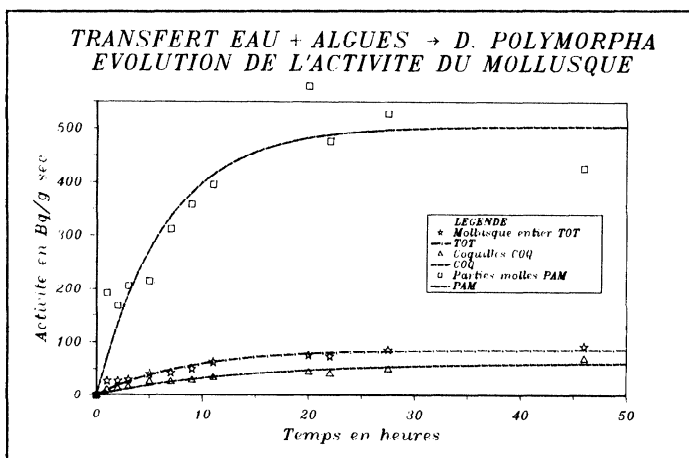


Graph. 7: Bilan de la répartition de l'activité dans la contamination globale.

3.4.1 Contribution EAU+ALGUES --> MOLLUSQUE

Les niveaux d'activité des coquilles et des mollusques entiers sont du même ordre de grandeur (60-85 Bq/g sec à 46 heures), par contre, celui des parties molles est supérieur d'un facteur 7 à 46 heures (Graph. 8).

Comme nous l'avons montré dans l'essai de contamination directe, les coquilles dictent l'allure de la radiocontamination de *Dreissena polymorpha*. Les phénomènes d'adsorption du radiocésium libre dans l'eau et de recouvrement de la coquille par les algues atteignent un niveau maximum, de ceux-ci résulte une activité constante à partir de 42.4 heures. Les parties molles et le mollusque entier arrivent à ce même état respectivement en 20.1 et 26.5 heures, mais le niveau atteint par les parties molles est supérieur d'un facteur 10. (Graph. 8 et Tab. 3).



Graph. 8: Evolution de l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha* -ASGLO- (Bq/g sec) en fonction du temps (heures). Contribution des voies de transfert EAU+ALGUES.

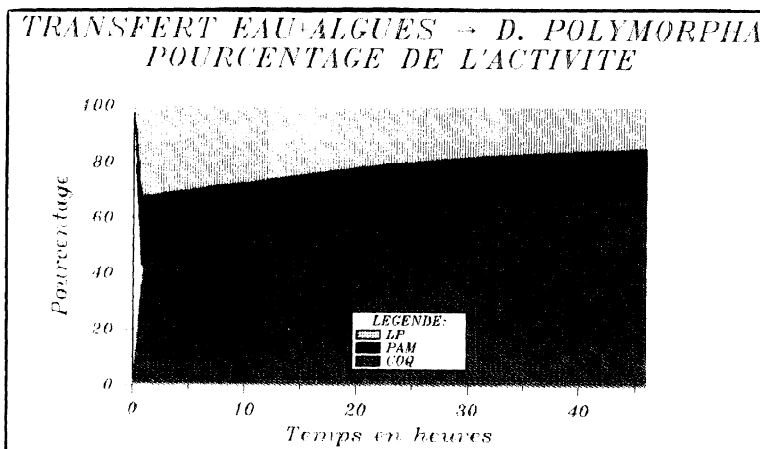
$$ASGLO = M * (1 - (EXP(-H/b)))$$

COMPOSANTE	M	Dev. stand. M	b	Dev. Stand. b	Corr.
TOT	86.91	5.2	8.39	1.33	0.7888
COQ	62.79	4.1	13.48	1.90	0.8809
PAM	504.11	48.7	6.37	1.81	0.7310

Tab. 3: Paramètres de l'équation d'accumulation du Cs-134 (Bq/g sec) par *Dreissena polymorpha* en fonction du temps (heures), pour les composantes: mollusque entier (TOT), coquille (COQ) et parties molles (PAM). Contribution des voies de transfert EAU+ALGUES.

La fraction d'activité incorporée dans les parties molles d'un mollusque entier atteint 23% en 1 heure, pour diminuer ensuite très lentement jusqu'à 46 heures (18%). On observe une diminution au cours du temps de la contribution du liquide palléal (33 à 15%), en relation avec la chute de l'activité des algues, celle-ci n'étant pas compensée par la faible augmentation de l'activité de l'eau (Graph. 9).

Par contre, la contribution des coquilles passe de 44% à 67%. (Graph. 9).

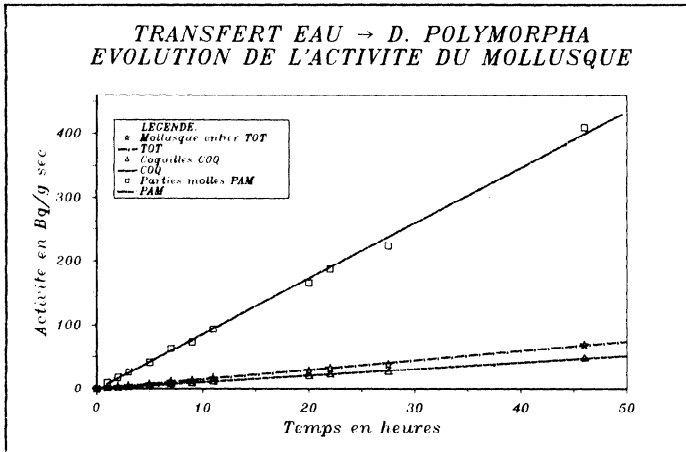


Graph. 9: Répartition du pourcentage de l'activité de *Dreissena polymorpha* entière pour ses différentes composantes: coquilles (COQ.), parties molles (PAM.) et liquide palléal (L.P.). Contribution des voies de transfert EAU+ALGUES.

3.4.2 Contribution EAU

La part de l'eau, calculée par le modèle du facteur de transfert de la contamination directe, permet de mettre en évidence, sur 46 heures, une augmentation linéaire de l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha*. On observe une augmentation de même tendance dans la portion "pseudo-linéaire" (50 premières heures) de la courbe de contamination directe, (Graph. 10 et 2). Les coquilles dictent le niveau de l'activité du mollusque entier. En effet les coquilles et le mollusque entier ont un comportement semblable (environ 50 Bq/g sec en 46 heures). Les parties molles ont une activité supérieure d'un facteur 8 (400 Bq/g sec à 46 heures).

Cependant, l'activité des parties molles est supérieure d'un facteur 1.6 à la valeur observée à 46 heures dans la contamination directe. En effet, on mesure dans l'eau 62% d'activité supplémentaire dans le cas de la contamination globale. (Graph. 5 et 1).

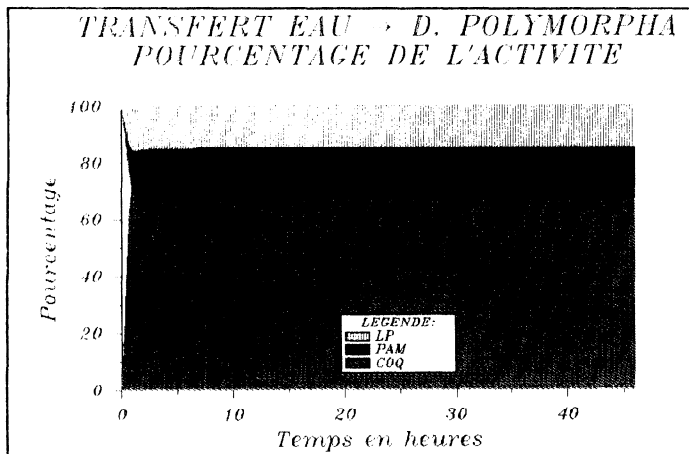


Graph. 10: Evolution de l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha* -AS::UD- (Bq/g sec) en fonction du temps (heures). Contribution de la voie de transfert EAU.

$ASMUC = m \cdot H + b$			
COMPOSANTE	m	b	Coeff. Corr.
TOT	1.491	0.109	0.9992
COQ	1.034	0.115	0.9992
PAM	8.706	-1.281	0.9987

Tab. 10: Paramètres de l'équation d'accumulation du Cs-134 (Bq/g sec) par *Dreissena polymorpha* en fonction du temps (heures), pour les composantes: mollusque entier (TOT), coquille (COQ) et parties molles (PAM). Contribution de la voie de transfert EAU.

De la même manière, les contributions du liquide palléal, des parties molles et des coquilles dans la radiocontamination du mollusque entier sont en tout point comparables à celles obtenues pour la contamination directe. (Graph. 11).



Graph. 11: Répartition du pourcentage de l'activité de *Dreissena polymorpha* entière pour ses différentes composantes: coquilles (COQ.), parties molles (PAM.) et liquide palléal (L.P.). Contribution de la voie de transfert EAU.

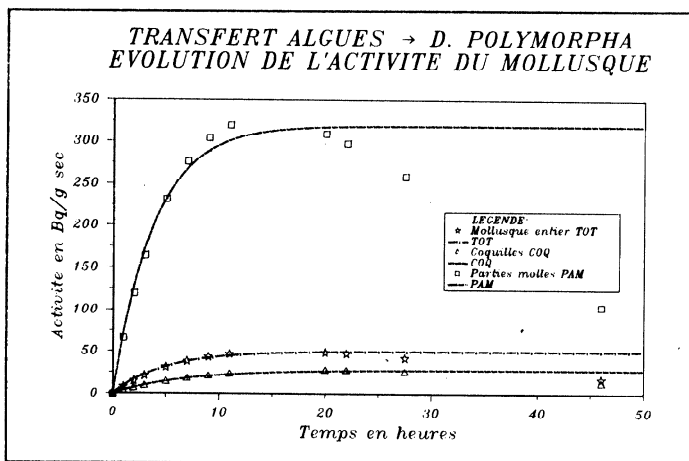
3.4.3 Contribution Algues

Dans le cas de la contribution des algues, les parties molles atteignent rapidement (12 heures) leur niveau d'activité maximum. (Graph. 12). La chute prononcée de l'activité spécifique des algues filtrées (Graph. 6), est responsable de cette allure de courbe. Le même phénomène rend compte de la prise d'activité spécifique des coquilles, conséquence du dépôt des algues, avec comme différence un équilibre relatif atteint en 22 heures.

Les activités spécifiques des coquilles et du mollusque entier sont du même ordre de grandeur, par contre celle des parties molles est supérieure d'environ un facteur 9-10.

Les "plateaux" sont atteints en 12 heures pour les parties molles, 16 heures pour le mollusque entier et 22 heures pour les coquilles (Graph. 12 et Tab. 5).

Il faut remarquer que la contribution des algues, malgré leur activité décroissante, est de loin prépondérante à celle de l'eau pendant les 8 premières heures dans la radiocontamination des parties molles (68 Bq/g sec par l'eau -Graph. 10- et 280 Bq/g sec par les algues -Graph. 12-): soit 310% d'activité en plus dans les parties molles due aux algues. Après 30 heures, la voie eau prend le pas sur celle des algues. La même remarque peut être faite pour les coquilles et le mollusque entier avec 130% et 235% d'activité supplémentaire apportée par les algues.



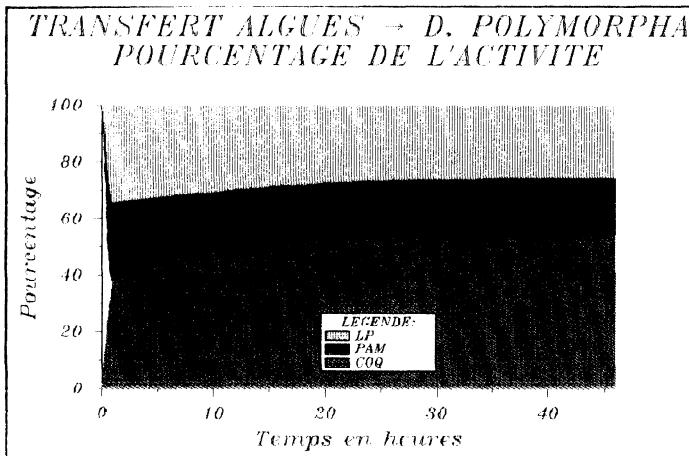
Graph. 12: Evolution de l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha* -ASHUALG- (Bq/g sec) en fonction du temps (heures). Contribution de la voie de transfert ALGUES.

$$ASMUALG=M*(1-(EXP(-H/b)))$$

COMPOSANTE	M	Dev. stand. M	b	Dev. Stand. b	Corr.
TOT	50.24	1.063	4.96	0.292	0.7872
COQ	28.35	0.658	6.90	0.426	0.8026
PAM	318.77	8.278	3.81	0.311	0.7327

Tab. 5: Paramètres de l'équation d'accumulation du Cs-134 (Bq/g sec) par *Dreissena polymorpha* en fonction du temps (heures), pour les composantes: mollusque entier (TOT), coquille (COQ) et parties molles (PAM). Contribution de la voie de transfert ALGUES.

Pour un mollusque entier (Graph. 13), la contribution des coquilles augmente de 40% à 54% en 46 heures, celle des parties molles diminue de 26% à 22% durant les 8 premières heures, pour se stabiliser aux environs de 20% à 46 heures.



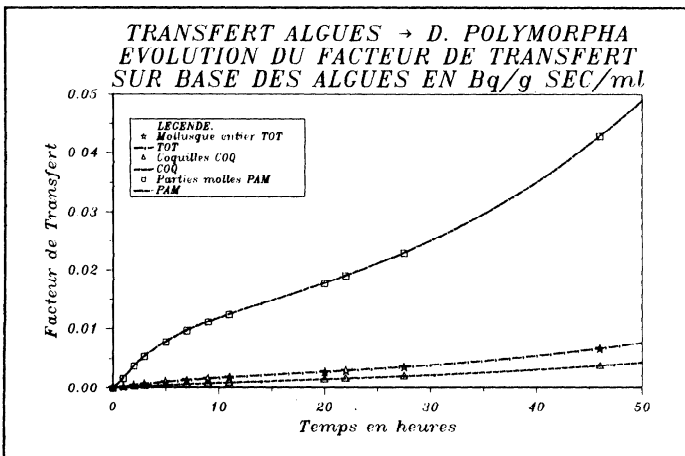
Graph. 13: Répartition du pourcentage de l'activité de *Dreissena polymorpha* entière pour ses différentes composantes: coquilles (COQ.), parties molles (PAM.) et liquide palléal (L.P.). Contribution de la voie de transfert ALGUES.

3.4.4 Facteurs de transfert ALGUES --> MOLLUSQUE

Les courbes des facteurs de transfert ALGUES --> MOLLUSQUE ont une allure exponentielle présentant un point d'inflexion. (Graph. 14). Cette allure résulte du quotient point par point de deux modèles exponentiels, l'un positif (-ASMUALG- Graph. 12), l'autre négatif (-ASALG- Graph. 6).

Les facteurs de transfert du mollusque entier et des coquilles augmentent légèrement au cours du temps. Les niveaux de fin d'expérience (46 heures), sont de l'ordre de 10^{-3} : 0.0067 pour le mollusque entier et 0.0038 pour les coquilles. Les parties molles concentrent davantage, le facteur de transfert à 46 heures est supérieur d'un facteur 10 (0.043). (Graph. 14 et Tab. 6).

L'allure de ces courbes montre qu'aucun équilibre n'est atteint en 46 heures de contact algues-mollusques. Cependant, nous pouvons supposer que l'on observera un tassement de la courbe à plus long terme avec l'obtention d'un plateau. Nos conditions expérimentales ne nous permettent donc pas d'évaluer le moment de ce tassement et par conséquent d'avancer une estimation de la valeur des facteurs de transfert à l'équilibre.



Graph. 14: Evolution du facteur de transfert du Cs-134 des algues vers les différentes composantes de Dreissena polymorpha en fonction du temps (heures).

$$FT = (1 - \text{EXP}(-H/a)) / (M * \text{EXP}(-H*b)) + (N * \text{EXP}(-H*c))$$

TRAITEMENT	M	N	a	b	c
TOT	1238.16	692.89	4.962	1.846	0.033
COQ	2193.43	1227.83	6.900	1.846	0.033
PAM	195.04	109.21	3.810	1.846	0.033

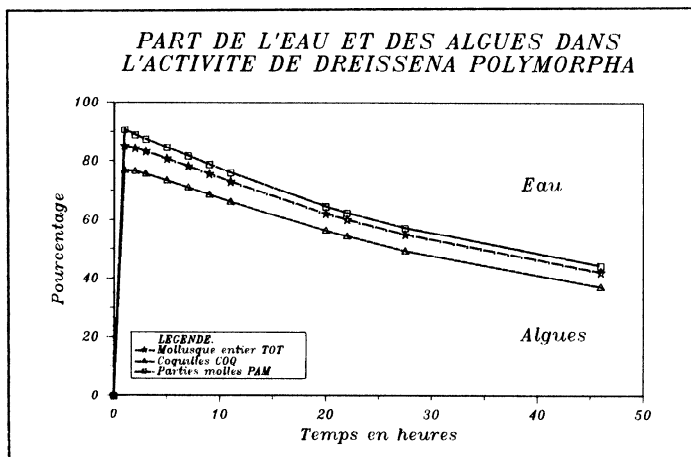
Tab. 6: Paramètres de l'équation du facteur de transfert du Cs-134, des algues vers Dreissena polymorpha en fonction du temps (heures), pour les composantes: mollusque entier (TOT), coquille (COQ) et parties molles (PAM).

Le tableau 7 permet de comparer les facteurs de transfert dus aux deux voies de contamination pour différents temps de contact. La voie de transfert eau induit des facteurs de transfert de loin plus élevés.

TRAITEMENT	H=1 heure		H=9 heures		H=46 heures	
	FT EAU	FT ALGUE	FT EAU	FT ALGUE	FT EAU	FT ALGUE
TOT	3.05	2.11 10 ⁻⁴	25.56	1.63 10 ⁻³	96.43	6.75 10 ⁻³
COQ	2.13	0.88 10 ⁻⁴	17.84	8.02 10 ⁻⁴	66.84	3.80 10 ⁻³
PAM	17.00	1.69 10 ⁻³	143.94	1.12 10 ⁻²	564.90	4.28 10 ⁻²

Tab. 7: Valeurs des facteurs de transfert pour les contributions de l'eau et des algues dans la contamination des différentes composantes de Dreissena polymorpha.

Par contre, dans nos conditions, la part des algues dans l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha* prédomine jusqu'à la 30^{ème} heure, l'eau prenant ensuite le pas sur les algues (Graph. 15).



Graph. 15: Part de l'eau et des algues dans l'activité des différentes composantes de *Dreissena polymorpha*.

4. CONCLUSIONS

Quelque soient les voies de transfert considérées, l'analyse des coquilles permet d'évaluer le niveau de radiocontamination global de *Dreissena polymorpha*.

Les parties molles gardent cependant toute leur importance car, susceptibles d'être intégrées à la chaîne alimentaire, elles absorbent plus rapidement la radioactivité apportée par l'eau ou par les algues.

La voie de transfert ALGUES --> HOLLUSQUE est dominante dans nos conditions expérimentales pendant les 30 premières heures, le transfert EAU --> HOLLUSQUE devenant ensuite plus important.

Ce type d'expérimentation peut être rapproché "in situ" à un cas de radiocontamination aiguë d'une nappe d'eau où l'activité des algues diminue par décorporation et dilution due à la multiplication de ces dernières.

L'importance des algues comme voie de contamination, loin d'être négligeable, pourrait toutefois devenir prépondérante en cas de radiocontamination chronique du milieu. Dans ce cas, les algues en équilibre

avec le milieu ne devraient pas présenter de diminution sensible de leur activité et donc contribuer de façon plus marquée à la contamination de *D. polymorpha*.

Afin de déterminer la part des algues dans la radiocontamination de *Dreissena polymorpha*, nous avons utilisé deux systèmes expérimentaux distincts: une contamination directe par l'eau et une contamination globale par l'eau et les algues chez les mollusques. Nous sommes partis de l'hypothèse que les deux systèmes étaient comparables au niveau du comportement chimique du radiocésium: il est peu probable que, simultanément à la désorption du radioélément par les algues, des excréments modifient la composition du milieu et donc les phénomènes d'accumulation du radionucléide par les mollusques. Néanmoins, il serait intéressant de vérifier la véracité de cette hypothèse en comparant les voies de transfert EAU/ALGUES --> MOLLUSQUES dans un même système expérimental, où le Cs-134 de l'eau (contamination directe) serait directement désorbé par les algues. Dans ce cas, nous pourrions travailler réellement à partir de deux systèmes expérimentaux comparables. Cette approche fait l'objet d'une expérimentation en cours (nous y envisageons également un apport régulier d'algues).

BIBLIOGRAPHIE

1. [1] BOCQUET H.. *Produits et problèmes pharmaceutiques*, 20, 2, (1965), 3-8 p.
2. [2] BOVARD P., L. FOULQUIER et A. GRAUBY. *Malacologia*, 9,1, (1969), 65-72 p.
3. [3] AVARGUES M., L. FOULQUIER et A. VILQUIN. *Radioprotection*, 8, 1, (1972), 19-32 p.
4. [4] DE CLERCQ-VERSELE H. et R. KIRCHMANN. *L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse: cinq années d'études in situ et d'approche expérimentale.* (1976-1980). Rapport BLG 555, (1982), 54 pp.
5. [5] KIRCHMANN R.. *L'impact des rejets de la centrale nucléaire de Tihange (Belgique) sur l'écosystème Meuse: études in situ et recherches expérimentales durant la période 1981-1984.* Rapport BLG 573, (1985), 48 pp.
6. [6] BOURDON M., R. KIRCHMANN, J. BINET, E. FAGNIART et A. COLETTE. *Bilan de l'utilisation de cultures d'algues pour la détection des radioéléments présents dans les effluents des installations nucléaires* in BONNYNS-VAN GELDER E. and KIRCHMANN R., *Role of microorganisms on the behaviour of radionuclides in aquatic and terrestrial systems and their transfer to man. Proc. workshop, Brussels, 25-27 April 1984.* UIR - CEC, 285 pp.
7. [7] RALSTON M.L. and R.I. JENNRICH. *DUD, a Derivative-Free Algorithm for Nonlinear Least Squares*", *Technometrics*, 1, (1978), 7-14 p.
8. [8] MORTON B. *Proc. Malac. Soc. Lond.*, 39, (1971), 289-301 p.
9. [9] FOULQUIER L., P. BOVARD et A. GRAUBY. *Contamination expérimentale de *Margaritana margaritifera* (L) (bivalve d'eau douce) par le Cs-137.* Rapport CEA-R-3054, (1966), 34 pp.
10. [10] FOULQUIER L.. *Données synthétiques sur les publications de radioécologie de la section de radioécologie.* Rapport CEA-BIB-229, (1978), 172 pp.
11. [11] HARVEY R.S.. *Health Physics*, 17, (1969), 149-154 p.
12. [12] KING S.F.. *Ecology*, 45, 4, (1964), 852-858 p.

13. [13] VAN DER PLOEG H.A., D.C. PARZICK, H.H. WILCOX, J.R. KERCHER and S.V. KAYE. Bioaccumulation for radionuclides in freshwater biota. O.R.N.L.-5002, (1975), 222 pp.
14. [14] PALLY M. et L. FOULQUIER. Synthèse bibliographique sur la capacité et les modalités de la fixation du radiocésium par les végétaux aquatiques. Rapport CEA-BIB-235, (1981), 255 pp.
15. [15] KRAUSS R.W. and W.H. THOMAS. *Plant Physiology*, 29, 3, (1954), 205-214 p.
16. [16] GONS H.J. and L.R. MUR. *Arch. Hydrobiol.*, 85, 1, (1979), 41-46 p.

SAMENVATTING.

In natuurlijke omgeving kan *Dreissena polymorpha* radioactief besmet worden door "predatie" van een alge zoals *Scenedesmus obliquus* maar eveneens door rechtstreekse besmetting langs het water (radiocesium ontlast door de alge). In gecontroleerde omstandigheden is het moeilijk de bijdrage van deze twee transfer banen te evalueren daar de alge ongeveer 50 % van haar activiteit in een uur verwijderd. Het is dus noodzakelijk enerzijds de globale besmetting van het weekdier door water en algen, anderzijds de rechtstreekse besmetting door water alléén te onderzoeken. Het aandeel van de algen kan aldus bepaald worden. De absorptie kinetiek van het radioelement en de evolutie van de transfer factoren werden gemodeliseerd en de rol van de schelp en weke delen wordt gekwantificeerd. Men stelt het overwicht van de trofische transfer baan (alge-weekdier) gedurende de 30 eerste uren van het experiment in het licht.

ABSTRACT.

Dreissena polymorpha can in natural conditions be radiocontaminated either by "predation" of algae such as *Scenedesmus obliquus* or directly by water (radiocesium decorporated by the algae). It is difficult in controlled conditions to evaluate the exact contribution of these both transfer pathways because algae eliminate approximately 50 % of their activity in one hour. It is thus necessary to investigate on one side the global contamination of the mollusc by water and algae and on the other side the direct contamination by water alone. The difference gives the contribution of the algae. The absorption kinetics of the radioelement and the evolution of the transfer factors are modelised, the role of shell and soft tissues is quantified. The dominating role of the trophic transfer pathway (algae-mollusc) under the 30 first hours of experimentation is shown.

ETUDES DES PHENOMENES
DE BIOCONCENTRATION DES RADIONUCLIDES
DANS UN ECOSYSTEME FLUVIAL

STUDIES OF RADIONUCLIDE BIOCONCENTRATION
PHENOMENA IN A FLUVIAL ECOSYSTEM

L. FOULQUIER, J.P. BAUDIN et A. LAMBRECHTS
CEA - IPSN - DERS

Service d'étude et de recherche sur l'environnement
Laboratoire de radioécologie des eaux continentales
CEN - Cadarache - BP 1 - 13108 St-Paul-lez-Durance

RESUME

Les auteurs abordent la radioécologie du bassin Rhôdanien qui fait actuellement l'objet d'un programme coordonné de la Commission des Communautés Européennes. Le Rhône est pris en considération en fonction du nombre et de la variété des installations nucléaires présentes.

La première partie concerne les études in situ. Les sédiments constituent le lieu de stockage préférentiel des radionucléides. Certains végétaux aquatiques sont de bons indicateurs de niveau de pollution radioactive du fleuve. Les poissons par leur place dans les chaînes trophiques et les possibilités de transfert à l'homme doivent être pris en compte.

La deuxième partie expérimentale traite des mécanismes de bioconcentration et d'élimination. En prenant l'exemple du ^{60}Co , il est étudié successivement le transfert eau - sédiment - poisson, eau - scenedesmus, eau - carpe en considérant la part due au transfert trophique, le rôle de la température et le calcul des périodes biologiques.

SUMMARY

The authors deal with the Rhone Basin radioecology, which is presently the subject of a coordinated program by the European Community Commission. The Rhone is considered with respect to the number and diversity of existing nuclear installations.

The first part covers field surveys. Sediments constitute a privileged place for storage of radionuclides. Some water plants are good indicators of the radioactive pollution level in the river. Due to their place in the trophic chains and to the possibilities of transmission to man, fish must be taken into account.

The second experimental part deals with the bioconcentration and elimination mechanisms. The example of ^{60}Co is used to successively study water - sediment - fish, water - Scenedesmus, water - carp transfer, considering the part played by the trophic transfer, that played by the temperature, and the calculation of the biological periods.

INTRODUCTION

Les journées de Lille sur l'environnement ont permis de dégager des recommandations en écotoxicologie (1) que nous nous efforçons de mettre en application en radioécologie.

Le bassin Rhôdanien comprend 17 centrales et une usine de retraitement de combustible. Les rejets liquides des centrales des réacteurs à eau pressurisée comprennent essentiellement les radiocesium, ^{131}I , ^{54}Mn , ^{51}Cr avec une part importante de ^{58}Co (10 à 72 %) et du ^{60}Co (8 à 46 %) (2). Dans le fleuve, ce radiocobalt est, en proportion variable, sous forme particulaire, cationique, anionique et neutre.

Le Rhône fait l'objet d'études radioécologiques pour le sédiment et les organismes aquatiques. Des comparaisons avec des zones de référence autorisent une évaluation de l'incidence de l'industrie nucléaire sur l'environnement en quantifiant la radioactivité naturelle et en distinguant ce qui revient aux retombées des explosions nucléaires et aux rejets atmosphériques ou liquides. Cela pose la question du choix des compartiments et de la qualité des indicateurs biologiques. Les méthodes de prélèvements, de préparation des échantillons et de métrologie doivent être bien définies et reproductibles (3). Ces constats sont confrontés à la complexité des systèmes et à l'hétérogénéité et la variabilité des paramètres. L'expérimentation est indispensable pour comprendre les mécanismes de contamination et de transfert. On peut simplifier les structures et segmenter les espaces comme le temps et le milieu et isoler des facteurs abiotiques. On peut considérer les phénomènes de contamination directe et les transferts entre plusieurs niveaux trophiques successifs (4, 5).

Toutes ces voies sont complémentaires et visent à une approche intégrée de l'ensemble pour tendre vers une interprétation globale des mécanismes et élaborer des modèles prédictifs (6).

Nous donnons ici les premiers éléments de cette approche en prenant le cas du radiocobalt.

1. ETUDES RADIOECOLOGIQUES IN SITU

1.1. Concentration des radionucléides naturel et artificiel des sédiments du Rhône

Certains radioéléments peuvent s'accumuler dans les dépôts sédimentaires des fleuves. Comme l'indique le Tableau 1, en prenant comme référence la zone amont de CREYS-MALVILLE exempte d'effluents radioactifs, l'impact des installations est bien visible. On note en aval des centrales nucléaires une augmentation des concentrations en ^{137}Cs et la présence principalement de ^{58}Co et de ^{60}Co . En aval de l'usine de Marcoule l'augmentation est significative pour le ^{137}Cs , les teneurs en 58 et ^{60}Co sont peut différentes, celle du ^{110m}Ag augmente légèrement et il apparaît le ^{134}Cs , le ^{54}Mn , le ^{125}Sb et surtout le ^{106}Ru et le ^{144}Ce .

Les concentrations pour le radiocesium, le ruthenium, le césium et le radiocobalt ont peu variées depuis 1979 (7); par contre de nouveaux radionucléides sont détectés. De même ces valeurs confirment les résultats obtenus de 1979 à 1983 (8). Ces comparaisons sont valables dans la mesure où la physico-chimie des sédiments du Rhône est voisine tant du point de vue de la minéralogie (illites

Station	% d'éléments fins ($\phi \leq 50 \mu\text{m}$)	Radioactivité naturelle				Radioactivité artificielle								
		^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{137}Cs	^{134}Cs	^{58}Co	^{60}Co	$^{106}\text{Ru} - \text{Rh}$	$^{144}\text{Ce} - \text{Pr}$	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{54}Mn	^{125}Sb
Amont Creys-Malville	26,1	42	38	37	470	3	-	-	-	-	-	-	-	-
Aval Bugey	20,1	44	33	37	480	7,5	1,6	-	3,4	-	-	-	-	-
Aval Saint Alban	73,8	95	80	60	665	23	-	9	10	-	-	2,7	-	-
Aval Cruas	94,9	90	65	60	700	16	-	-	2	-	-	2,8	-	-
Aval Tricastin	45,7	70	60	50	575	9	-	3,3	6,0	-	-	4,5	-	-
Caderousse	87,5	75	75	50	560	80	15	5,0	9,0	-	-	15	5,3	2,2
Sauveterre	58,8	35	35	29	330	130	14	7,0	2,6	114	-	-	11	18
Avignon	93,6	125	125	57	710	1090	147	9,0	16,0	440	178	12	39	34
Aramon	84,8	75	75	53	565	382	62	5,0	7,0	257	120	7	58	16
Fourques	86,1	67	67	50	610	610	101	4,0	8,0	360	202	9	84	21

Tableau 1. Radioactivité des sédiments du Rhône prélevés en Juin-Juillet 1985
(en $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{sec}$)

$\approx 70\%$ et kaolinite $\approx 30\%$), que de la teneur en matière organique (1 à 4 %) ou de la composition métallique mesurée par l'activation neutronique (8).

Dans toutes les stations la radioactivité naturelle est similaire et se situe autour de 72 Bq.kg - 1 sec pour le ^{235}U , 65 pour le ^{226}Ra , 48 pour ^{232}Th et 600 pour le ^{40}K .

1.2. Exemples de fixation de radionucléides artificiels par des végétaux du Rhône

La pratique démontre que les végétaux aquatiques sont de bons radioindicateurs. Pour certains d'entre eux la commodité d'échantillonnage, la sédentarité et l'abondance permettent d'avoir un suivi dans le temps et dans l'espace, c'est le cas en particulier des renoncules présentes sur l'ensemble du bassin Rhodanien. Les mousses aquatiques ont incontestablement une capacité de fixation plus grande des micropolluants et peuvent être transplantées d'une station à une autre ; cela s'est avéré très efficace pour la détection du radium sur un site minier (9). Tous les exemples montrent une corrélation entre la présence du radionucléide dans l'eau et les végétaux et la possibilité de distinguer les sources de pollution : rejets liquides ou retombées atmosphériques.

Le Tableau 2 montre, pour les renoncules, un bilan général de la radioactivité artificielle sur l'ensemble du Rhône. On constate nettement l'importance du radiocobalt dans les rejets des centrales nucléaires et le nombre plus important de radionucléides présents en aval d'une usine de retraitement de combustible. Le ^{57}Co est présent de manière sporadique, le ^{58}Co et ^{60}Co sont toujours présents avec des valeurs plus élevées pour le ^{58}Co .

Stations	^{137}Cs	^{134}Cs	^{57}Co	^{58}Co	^{60}Co	^{54}Mn	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{125}Sb	^{106}Ru	^{144}Ce	^{95}Nb
Aval de la Centrale du Bugey	2,2	-	0,4	26,3	8,2	-	-	-	-	-	-
Aval de la Centrale de Saint Alban	1,8	-	-	15,1	4,6	-	-	-	-	-	-
Aval de la Centrale de Cruas	1,2	-	-	12,8	10,8	6,2	-	-	-	-	-
Aval de la Centrale de Tricastin	1,1	-	0,3	35,8	7,7	3,0	1,4	-	-	-	-
Aval de Marcoule (jusqu'à Vallabregues)	122	26,2	0,4	38,1	11,4	225	2,2	11,2	311	45,7	7,2

Tableau 2. Radioactivité γ artificielle moyenne de *Ranunculus aquaticus* du Rhône en Juin-Juillet 1985.
(en Bq . kg⁻¹ sec)

En un lieu donné, on distingue bien l'importance des produits d'activation (Tableau 3).

Radionucléides	Ranunculus	Myriophyllum
^{57}Co	1,8	0,4
^{58}Co	497	107
^{60}Co	132	26,3
^{54}Mn	249	47

Tableau 3. Radioactivité γ artificielle des produits d'activation de végétaux du Rhône prélevés en aval immédiat de la Centrale Nucléaire du Bugey en Juillet 1981.
(en Bq . kg⁻¹ sec)

Le Tableau 4 souligne l'intérêt particulier des mousses aquatiques comme radioindicateur.

	Radionucléides des retombées atmosphériques		
	Radioactivité naturelle	Radioactivité artificielle	
	^7Be	^{137}Cs	
Amont de Creys-Malville			
<i>Cinclidotus</i>	206	7	
<i>Myriophyllum</i>	95	3,9	
	Produits d'activation		
	^{58}Co	^{60}Co	^{54}Mn
	Aval de la Centrale de Cruas		
<i>Cinclidotus</i>	296	22	15
<i>Ranunculus</i>	128	11	6

Tableau 4. Mesure de radionucléides dans des zones non soumises et soumises à des rejets radioactifs.
(en Bq . kg⁻¹ sec)

1.3. Rôle des poissons dans le transfert des radionucléides à l'homme

Les poissons permettent une surveillance radioécologique sur une large échelle ; des travaux ont permis d'établir un bilan sur le haut et moyen Rhône (10, 11). Nous pouvons aussi donner quelques indications globales pour l'ensemble du bassin fluvial (Tableau 5).

Stations du Rhône	^{58}Co	^{60}Co	^{134}Cs	^{137}Cs
Amont Creys-Malville	–	–	–	$0,31 \pm 0,07$ (47/60)
Aval Bugey	$21,2 \pm 19,6$ (26/169)	$3,0 \pm 2,5$ (44/169)	$0,4 \pm 0,6$ (5/169)	$2,02 \pm 2,45$ (130/169)
Saint-Alban - Cruas	–	$0,12 \pm 0,89$ (3/64)	–	$0,26 \pm 0,07$ (47/60)
Aval Tricastin	$0,31 \pm 0,19$ (4/54)	$0,17 \pm 0,09$ (6/54)	$0,27 \pm 0,15$ (19/54)	$0,63 \pm 0,19$ (35/54)
Aval Marcoule	$0,20 \pm 1,88$ (2/231)	$2,21 \pm 4,42$ (15/231)	$2,35 \pm 0,47$ (88/231)	$11,16 \pm 2,34$ (127/231)

Tableau 5. Concentration en radionucléides artificiels émetteurs γ des poissons prélevés entre 1974 et 1984 (en Bq . kg⁻¹ frais)
(x/n) : Nombre de résultats significatifs par rapport au nombre de mesures effectuées.

Ces valeurs démontrent qu'il est possible de détecter dans les poissons, des radionucléides contenus dans les rejets liquides. Cette constatation générale devra être enrichie d'une analyse plus fine des résultats en liaison avec la date de mise en service des centrales.

En un lieu donné, ici à l'aval de la centrale nucléaire du Bugey, il a été possible de démontrer que la concentration en radionucléides des poissons est en relation directe avec celle des rejets (11) (Tableau 6).

Radionucléides	Rejets liquides de 1981 (en %)	Radioactivité des poissons en 1982	
		en Bq . kg ⁻¹ frais	en % de l'activité totale
⁵⁸ Co	72,2	45,5	73,2
⁶⁰ Co	17,3	9,2	14,9
⁵⁴ Mn	3,8	4,4	7,5
¹³⁷ Cs	0,9	2,0	3,1
¹³⁴ Cs	0,4	0,8	1,2

Tableau 6. Comparaison entre la composition des rejets liquides de la Centrale du Bugey et la concentration des radionucléides dans les poissons

Avec ces valeurs on peut, à titre d'exemple, calculer la dose délivrée à l'homme par la consommation de poissons, (12) en appliquant la formule :

$$D \text{ (S v . an}^{-1}\text{)} = \text{Concentration dans le poisson entier (Bq . kg}^{-1}\text{ frais)} \cdot \text{Quantité ingérée par an sur la base de 200 g par semaine (kg . an}^{-1}\text{)} \cdot \text{Facteur de dose k (S v . Bq}^{-1}\text{)}$$

Les calculs donnent : . pour le ⁵⁸Co (k = 7,7 . 10⁻¹⁰) D = 36,4 . 10⁻⁸
. pour le ⁶⁰Co (k = 2,7 . 10⁻⁹) D = 25,8 . 10⁻⁸
. pour le ⁵⁴Mn (k = 7,2 . 10⁻¹⁰) D = 3,3 . 10⁻⁸
. pour le ¹³⁷Cs (k = 1,4 . 10⁻⁸) D = 29 . 10⁻⁸
. pour le ¹³⁴Cs (k = 2,0 . 10⁻⁸) D = 16,6 . 10⁻⁸

Soit pour l'ensemble des radionucléides $D = 1,1 \cdot 10^{-6} \text{ Sv} \cdot \text{an}^{-1}$. La dose annuelle autorisée pour la population est de $5 \cdot 10^{-3} \text{ Sv} \cdot \text{an}$. La consommation de poissons représente dans ce cas :

$$\frac{1,1 \cdot 10^{-6} \cdot 10^{-2}}{5 \cdot 10^{-3}} = 0,02 \% \quad \text{de la dose autorisée.}$$

2. ETUDE EXPERIMENTALE DES MECANISMES DE TRANSFERT DU ^{60}Co

2.1. Importance du sédiment dans les transferts

Le sédiment étant un lieu d'accumulation des radionucléides, il est nécessaire d'étudier l'éventualité d'échanges directs avec les organismes aquatiques. Avec le ^{137}Cs , il a été montré que cette possibilité existe pour la carpe (13).

Nous avons abordé ce problème avec un mélange de cinq radionucléides (^{60}Co , ^{51}Cr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{22}Na) et le sédiment du bas Rhône. Nous n'évoquerons ici que les résultats relatifs au ^{60}Co dont nous avons démontré la similitude de comportement, qu'il soit utilisé isolément ou inclus dans un mélange (14).

L'expérience est réalisée dans six aquariums contenant 10 litres d'eau inactive, 100 g de sédiment préalablement contaminé et 10 carpes juvéniles. L'expérience dure 60 jours. La concentration en ^{60}Co des carpes augmente rapidement et nous n'obtenons pas d'état d'équilibre (Figure 1). Les rapports de la concentration des carpes à celle du sédiment (facteur de transfert FT) en fonction du temps permet de tracer une courbe dont l'équation est de la forme $\text{FT} = 0,19(1 - e^{-0,027t}) + 6 \cdot 10^{-3}(1 - e^{-0,224t})$.

Parallèlement, nous avons étudié le transfert direct du même mélange de radionucléides de l'eau vers les carpes. L'évolution du rapport entre la concentration en ^{60}Co des carpes et celle de l'eau (facteur de concentration : FC) correspond à une somme d'exponentielles : $\text{FC} = 2(1 - e^{-3,07t}) + 1,5(1 - e^{-0,12t}) + 0,6(1 - e^{-0,02t})$.

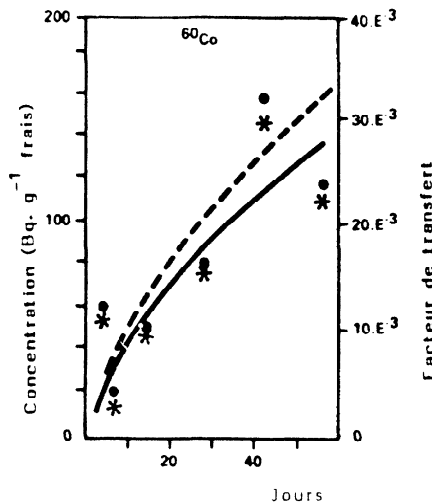


Figure 1. Transfert du ^{60}Co d'un sédiment vers la carpe

● - - - ● Concentration dans les poissons * - - - * Facteur de transfert

Nous avons montré pour le ^{137}Cs que les voies de transfert se cumulent (6). Il est légitime de se poser la même question à propos du cobalt.

En intégrant ces deux équations, nous pouvons vérifier si les résultats obtenus sont cohérents avec les observations de terrain. Dans la zone du bas Rhône on trouve dans les sédiments une valeur moyenne en ^{60}Co de $8 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$ (soit $4 \text{ Bq} \cdot \text{kg}$ frais) avec une eau ayant environ $0,4 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$.

Dans ce cas, le modèle nous donne pour les carpes une concentration de $0,2 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ frais (Figure 2).

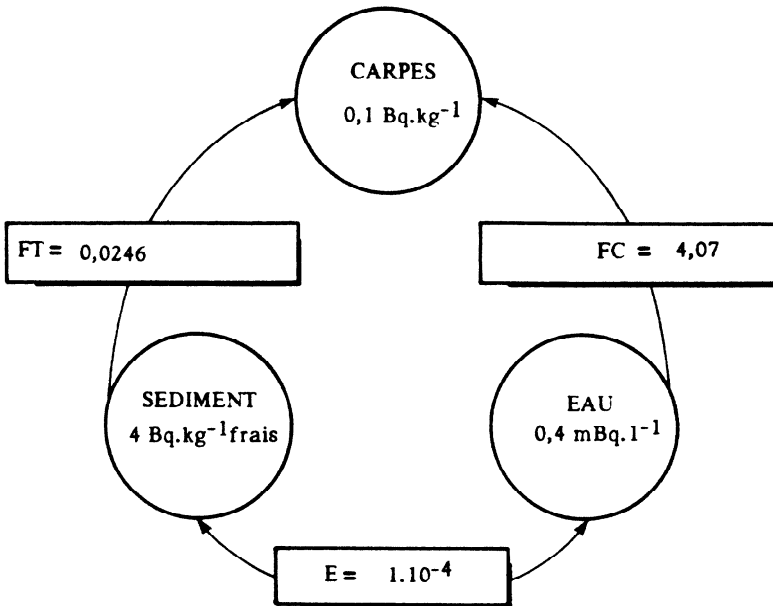


Figure 2. Modèle de transfert du ^{60}Co du sédiment et de l'eau vers les carpes calculé à 150 jours

Souvent les valeurs obtenues sont plus élevées. Cette approche est donc valable mais pas assez réaliste pour rendre compte des concentrations réelles rencontrées dans les poissons du Rhône. Il est nécessaire d'intégrer les autres voies de transferts trophiques qui s'ajoutent à ceux décrits ici.

2.2. Etude du transfert vers une algue planctonique *Scenedesmus obliquus*

Nous utilisons une culture réalisée dans un flacon contenant 15 litres de milieu LCO carencé en cobalt et stérilisé par autoclavage. La culture homogénéisée par agitation est maintenue à une température de 25°C . L'apport de gaz carbonique s'effectue par un barbotage d'air filtré et la culture est éclairée 16 heures par jour. Le ^{60}Co est ajouté au milieu immédiatement avant l'introduction de l'inoculum algal.

La forte carence du milieu en cobalt ne nuit pas au développement de la culture dans laquelle la biomasse algale atteint $0,266 \text{ mg sec.ml}^{-1}$ après 27 jours d'expérience (Fig. 3A). Malgré la quantité élevée de ^{60}Co introduite ($3,8 \cdot 10^6 \text{ Bq}$), on constate durant les 10 premiers jours une décroissance de la concentration du radionucléide dans le milieu (Fig. 3B1). L'évolution de la concentration du radiocobalt dans les algues (Fig. 3C) présente une phase d'augmentation rapide conduisant, après 9 jours, à la valeur maximale qui correspond à un facteur de concentration de 14500 en fonction du poids sec. On constate ensuite une phase de décroissance qui contraste avec le niveau de la teneur en ^{60}Co des algues qui reste élevé (Fig. 3B2). Cette opposition indique une dilution biologique du ^{60}Co dans la population phytoplanctonique en raison de la division cellulaire qui se traduit par une augmentation de biomasse alors que simultanément, la quantité de radiocobalt disponible diminue.

Introduites dans des fioles contenant du milieu non radioactif des algues ayant préalablement fixé du ^{60}Co présentent une décontamination rapide. Après 48 heures, la teneur résiduelle des algues atteint son niveau minimal qui représente 35 % de sa valeur initiale. La cinétique de l'élimination du ^{60}Co correspond à une somme de deux exponentielles ; d'après l'équation de l'évolution du pourcentage de rétention, $R = 56,5 \cdot e^{-0,984t} + 43,5 \cdot e^{-0,012t}$, on distingue deux périodes biologiques de 0,7 et 57 heures. Comme la cinétique de contamination, cette rapide élimination suggère que l'accumulation du ^{60}Co par *Scenedesmus obliquus* est essentiellement due à un phénomène d'adsorption.

2.3. Expériences de contamination et de décontamination de la carpe *Cyprinus carpio*

La carpe a été choisie en raison de sa très large distribution géographique et de son caractère omnivore.

Pour l'étude de la contamination par voie directe, 10 carpes d'environ 25 g sont placées dans des bacs contenant 5 litres d'eau contaminée à raison de 100 Bq.ml^{-1} et renouvelée tous les 3 jours. Les carpes sont nourries *ad libitum* avec un aliment composé industriel distribué sous forme de petits granulés.

Le taux de distribution de la nourriture étant adapté aux besoins des poissons une très nette corrélation apparaît entre la température de l'eau et le gain de masse des individus. Après 56 jours d'expérience celui-ci passe de 4 % à 8°C , à 146 % à 25°C , la teneur des carpes en ^{60}Co également corrélée à la température est, à la fin de l'expérience, de $865 \pm 477 \text{ Bq}$ (8°C) et de $3120 \pm 1050 \text{ Bq}$ (25°C). On remarque que le rôle du facteur thermique devient important au delà de 15°C . Cependant, l'intensité du métabolisme n'a que peu d'effet sur la concentration du radionucléide par les carpes ; sa valeur maximale s'élève à $330 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ à 8°C et à 15°C , à $450 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ à 20°C et à $550 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ à 25°C . Le facteur de concentration le reflète bien même si son évolution présente quelques différences (Figure 4), ses valeurs pour les températures extrêmes ne sont pas très éloignées ($3,1 \pm 1,6$ à 8°C et $4,8 \pm 1,2$ à 25°C).

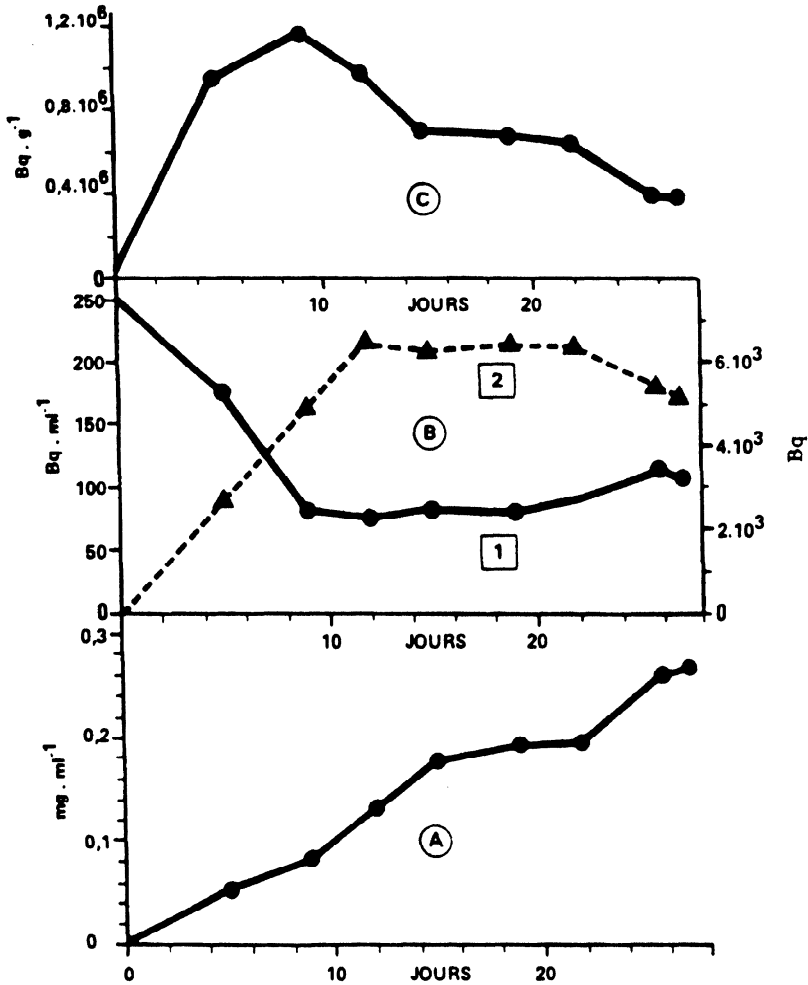


Figure 3. Evolution des différents paramètres relatifs à l'accumulation du ⁶⁰Co par *Scenedesmus obliquus*

A : Biomasse algale. B1 : Concentration du ⁶⁰Co dans le milieu de culture. B2 : quantité de ⁶⁰Co des algues contenues dans 50 ml de milieu. C : Concentration du ⁶⁰Co dans les algues.

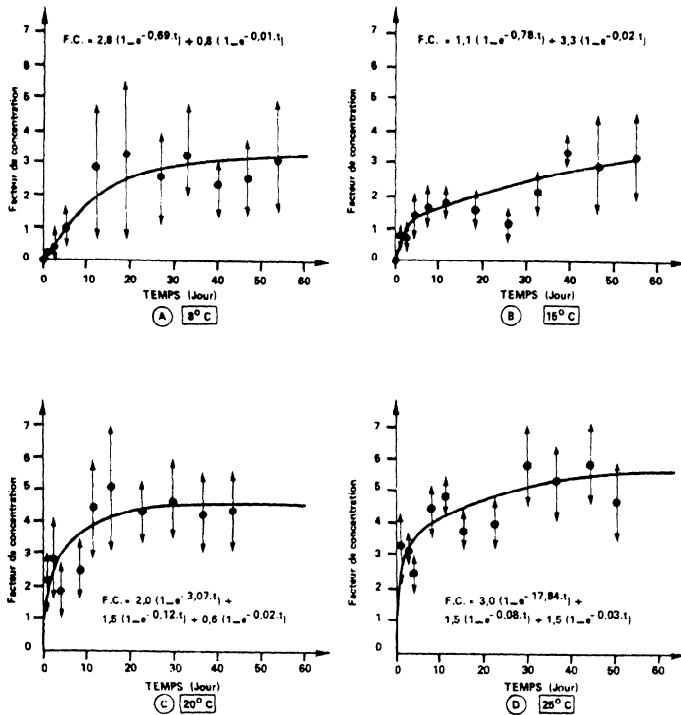


Figure 4. Evolution du facteur de concentration du ^{60}Co dans les carpes en contamination directe aux 4 températures.

L'étude de la contamination par la voie trophique a été suivie sur un lot de 10 carpes, pesant en moyenne 0,96 g, recevant 5 jours par semaine une ration alimentaire représentant environ 6,5 % de leur masse. La nourriture est constituée de 20 % d'aliment composé industriel et de 80 % de chair de limnées ayant séjourné dans de l'eau contenant 110 Bq.ml^{-1} de ^{60}Co . La quantité totale moyenne de radiocobalt absorbé par chaque poisson est de $43320 \pm 3650 \text{ Bq}$, ce qui correspond dans la nourriture à une concentration de $8930 \pm 140 \text{ Bq.g}^{-1}$.

- L'accumulation du ^{60}Co par la voie digestive est lente et l'évolution de la concentration du radionucléide peut être représentée par la somme de deux exponentielles (Fig. 5). Le niveau maximal de radioactivité atteint est faible comparé à la teneur totale en radiocobalt de la nourriture consommée. Le facteur de transfert (^{60}Co dans le consommateur / ^{60}Co dans la nourriture) fluctue entre $7,1 \pm 1,4 \cdot 10^{-3}$ et $11,9 \pm 2 \cdot 10^{-3}$ et le facteur de rétention (^{60}Co dans carpe / ^{60}Co total ingéré) décroît pendant les six premières semaines passant de $18,9 \pm 5,1 \cdot 10^{-3}$ à $3,4 \pm 0,8 \cdot 10^{-3}$. Les faibles valeurs de ces deux paramètres permettent de penser que le transfert étudié ne peut conduire à une bioamplification du radionucléide chez l'organisme consommateur, ce qui n'est pas le cas pour le ^{137}Cs (5).

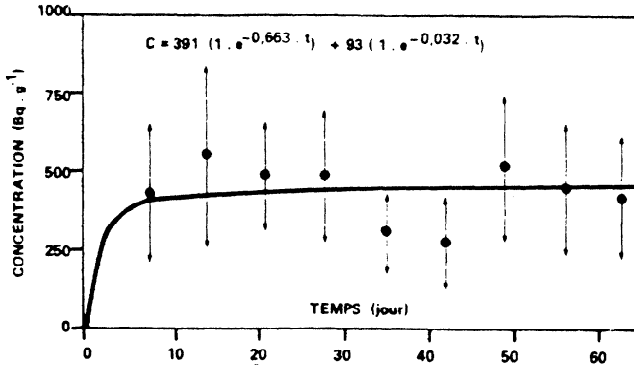


Figure 5. Evolution de la concentration du ^{60}Co dans les carpes contaminées par la voie trophique.

L'organotropisme montre que l'organe cible est le rein dans lequel on retrouve 10 à 60 % du radionucléide fixé alors qu'il représente 1,5 % de la masse d'un individu.

Quelle que soit la voie de contamination et la température, les carpes placées en milieu inactif et recevant de la nourriture non contaminée éliminent le radio-cobalt préalablement accumulé selon une cinétique semblable. L'évolution du pourcentage de rétention peut être décrite par une somme de 2 ou 3 exponentielles correspondant aux différentes périodes biologiques du radionucléide (Figure 6). Très généralement on distingue une période courte de 1 à 4 jours et une longue de 60 à 87 jours.

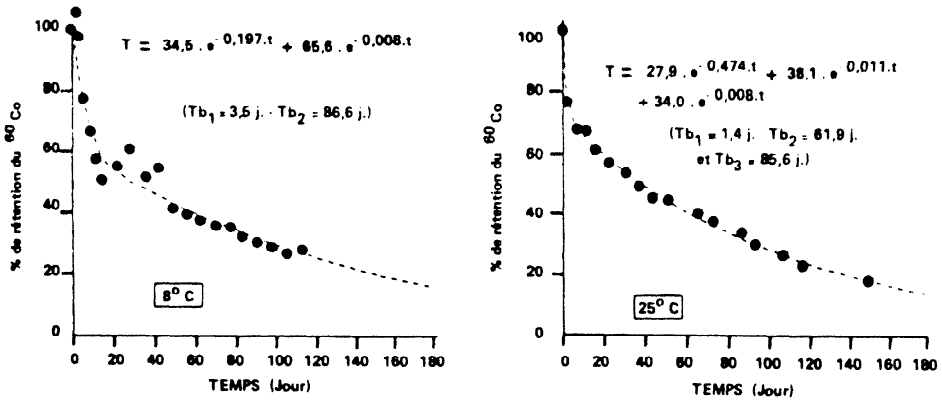


Figure 6. Elimination du ^{60}Co par des carpes préalablement contaminées par voie directe.

CONCLUSION

La connaissance du cycle d'un radionucléide dans un écosystème nécessite une approche par étapes (15).

Dans les rejets liquides le radiocobalt est un élément quantitativement important du terme source. Sa distribution dans les principaux compartiments de l'écosystème montre que le sédiment est un lieu de stockage, que les renouées et les mousses sont de bons radioindicateurs, que les poissons intègrent les radionucléides des rejets mais ont actuellement une contribution relativement faible à la dose à l'homme.

Le phytoplancton constitue par sa forte capacité de fixation une voie d'insertion privilégiée du ^{60}Co dans les chaînes trophiques.

Pour les poissons une possibilité de transfert direct par le sédiment existe ; il peut être significatif compte-tenu de la forte activité de ce dernier. La contamination par l'eau se traduit par un facteur de concentration maximal de 6 pour l'optimum thermique de la carpe. Le facteur de transfert par la nourriture restant à un niveau peu élevé ($12,5 \cdot 10^{-3}$) on peut montrer dans le cas étudié qu'il n'y a pas bioamplification. La période biologique longue se situe entre 62 et 87 jours.

Dans tous les cas, les quantités transférables par le sédiment, l'eau et la nourriture sont cumulatives et il convient d'en étudier expérimentalement les mécanismes pour comprendre les résultats obtenus *in situ*.

Une modélisation l'a permis pour le ^{137}Cs (6). Pour le ^{60}Co nous avons l'ambition d'élaborer un modèle s'appuyant sur un contenu expérimental plus riche tant du point de vue des facteurs écologiques que de la diversité des transferts trophiques.

Pour chaque radionucléide rejeté la recherche en est à des stades différents. Aujourd'hui il faut porter nos efforts vers la prise en compte de la composition des effluents en fonction du vieillissement des Centrales, vers les radionucléides liés au fonctionnement des sites miniers (16) et des usines de retraitement des combustibles (17).

BIBLIOGRAPHIE

1. LASCOMBE C., MOUVET C., PATTEE E., VERREL J.L., 1983. Les micropolluants dans les divers compartiments de l'écosystème des eaux douces . utilisation des niveaux de contamination comme indicateurs de qualité. 5^{es} journées scientifiques et techniques . l'eau, la recherche, l'environnement. Lille - Ministère de l'Environnement. Synthèse et Conclusions. Collection Recherche Environnement. 22. 13-18.
2. PICAT Ph. et coll., 1985. Study of the physicochemical form of Cobalt in the Loire River. In : Speciation 85 Seminar, speciation of fission and activation products in the environment. Oxford. 16-19 April. 12 p.
3. FOULQUIER L., PHILIPPOT J.C., BAUDIN-JAULENT Y., 1982. Métrologie de l'environnement. Echantillonnage et préparation d'organismes d'eau douce. Mesure des radionucléides émetteurs β . Rapport C.E.A.-R-5164. - 53 p.
4. BAUDIN J.P., 1983. Etude expérimentale de la bioaccumulation et de l'excrétion du ^{65}Zn par un poisson dulçaquicole *Cyprinus Carpio L.* *Acta oecologica*. Oecol. Applic., 4, 2, 139-149.
5. FOULQUIER L., LAMBRECHTS A., 1982. Essai d'évaluation des taux de transfert directs et indirects du césium 137 dans une chaîne alimentaire d'eau douce simplifiée. Rapport C.E.A.-R-5183. - 71 p.

6. LAMBRECHTS A., 1984. Essai de modélisation du transfert du césium 137 dans les compartiments d'un écosystème d'eau douce simplifié. Rapport C.E.A. R-5268. 181 p.
7. PICAT P. et coll., 1979. La radioécologie appliquée aux études de sites électronucléaires. Etude radioécologique du Rhône moyen. Essai d'interprétation des mesures in situ de l'activité des sédiments. 2^{ème} Symp. Internat. de radioécologie CEN-Cadarache, 351-382.
8. FOULQUIER L., PALLY M., 1985. Données radioécologiques sur les sédiments du Bas Rhône. Revue Française des Sciences de l'eau. 3, 3, 259-277.
9. BAUDIN-JAULENT Y., DESCAMPS B., 1985. Proposition d'un test utilisant les mousses aquatiques pour le contrôle radioécologique de l'environnement. Radioprotection, 20, 3, 197-205.
10. FOULQUIER L., PALLY M., DESCAMPS B., BAUDIN-JAULENT Y., LAMBRECHTS A., 1979. Etude radioécologique du Rhône moyen. Essai d'interprétation des mesures de l'activité des poissons. 2^{ème} Symp. Internat. de radioécologie. CEN-Cadarache, 383-440.
11. FOULQUIER L., DESCAMPS B., BAUDIN-JAULENT Y., 1985. Mesure et interprétation des teneurs en radionucléides des poissons du Haut-Rhône français. Verh. Internat. Verein Limnol. Stuttgart, 22, 2470-2475.
12. C.C.E., 1979. Méthodologie pour l'évaluation des conséquences radiologiques des rejets d'effluents radioactifs en fonctionnement normal. Rapport établi conjointement par le Commissariat à l'Energie Atomique et le National Radiological Protection Board. 350 p.
13. LAMBRECHTS A., FOULQUIER L., 1983. Etude expérimentale des possibilités de transfert direct du césium 137 du sédiment vers la carpe *Cyprinus Carpio L.* Rapport C.E.A.-R-5227. - 73 p.
14. MAUREL-KERMARREC, PALLY M., FOULQUIER L., HEBRARD J.P., 1983. Cinétique de la fixation d'un mélange de césium 137, de chrome 51, de cobalt 60, de manganèse 54 et de sodium 22 par *Platyhypnidium riparioides* (Hedw) Dix. Cryptogamie, Bryol. Lichenol., 4, 4, 299-313.
15. FOULQUIER L., BOUDOU A., 1983. Les micropolluants dans les divers compartiments de l'écosystème des eaux douces : utilisation des niveaux de contamination comme indicateur de qualité. 5^{es} journées scientifiques et techniques : l'eau, la recherche, l'environnement. Collection recherche environnement. 22, 71-78.
16. DESCAMPS B., FOULQUIER L., CARTIER Y., BAUDIN-JAULENT Y., 1982. L'apport des mesures hydrobiologiques dans l'étude radioécologique d'un site français d'extraction et de traitement d'uranium. Colloque international sur la gestion des déchets provenant de l'extraction et du traitement du minerai d'uranium, Albuquerque, USA. 10-14 Mai. I.A.E.A. Vienne. 523-534.
17. GRAUBY A., COLLE C., SAAS A., FOULQUIER L., BAUDIN-JAULENT Y., MORELLO M. Cycle des actinides dans l'environnement terrestre et dulçaquicole. Actinides Symp. organisé par le C.E.A. 2-6 Sept. 1985. Aix -en-Provence - France. - 27 p. (sous presse).

SAMENVATTING.

De ecologie van het Rhone bekken, dat het onderwerp uitmaakt van een gecoördineerd programma van de Commissie der Europese Gemeenschappen, wordt voorgesteld. De Rhone wordt in aanmerking genomen omwille van het aantal en de verscheidenheid van de aanwezige kerninstallaties.

Het eerste deel betreft de studies in situ. Nucliden gaan zich bij voorkeur in de afzetting opstapelen. Bepaalde watergewassen zijn goede indicatoren van het peil van de radioactieve pollutie van de stroom. Er dient rekening gehouden met de vissen omwille van hun plaats in de trofische ketens en de mogelijkheid van transfer naar de mens.

Het tweede experimenteel gedeelte behandelt de bioconcentratie en de eliminatie processen. Opeenvolgend, met Co-60 als voorbeeld, wordt de transfer water-sediment-vis, water-scenedesmus, water-karper onderzocht waarbij de rol van de trofische transfer, de rol van de temperatuur en de berekening van de biologische halveringstijden in acht genomen worden.

**ASSESSMENT OF THE DOSE TO MAN FROM THE SEDIMENTS OF A RIVER
RECEIVING RADIOACTIVE EFFLUENTS RELEASED BY A WASTE
TREATMENT FACILITY**

Th. Zeevaert, G. Fieuw, R. Kirchmann, G. Koch, C.M. Vandecasteele
SCK - CEN / MOL (Belgium).

Final report prepared in the framework of a IAEA Co-ordinated Research Programme on the Role of Sediments in the Accumulation and Transport of Radionuclides in Waterways.

06.05.1986

Abstract

The study described has been carried out in the framework of the IAEA-Co-ordinated Research Programme on the "Role of Sediments in Transport and Accumulation of Radionuclides in Waterways". It consisted in the investigation of the applicability of simple models for the assessment of the dose to man from the sediments of the Neet river which is receiving low level radioactive effluents from the S.C.K./C.E.N. The external irradiation by sediment deposits appears as the most important pathway of exposure of man. For the dose assessment of this way of exposure, two simple predictive models have been applied :

the NRC Regulatory Guide 1.109 [1] and the "Schaeffer" model [2], in combination with the dose calculation method, proposed by Hunt [3].

The NRC model has been adapted to the Neet river by adjusting the time of exposure of the bed sediments to the contaminated water. In the case of the Schaeffer model, the sedimentation constants have been determined by sampling experiments. The final validation of both models was performed by comparing the measured and predicted values of external dose rates on the Neet river banks from the contaminated bed sediment.

0. Introduction

The S.C.K./C.E.N.-Nuclear Research Centre, is equipped with a major waste treatment facility. After treatment, the liquid low-level radioactive waste is released into the Mol-Neet, according to legal authorization. The relative composition of the $\beta\gamma$ - and α -activity in the liquid effluents, discharged into the Mol-Neet during the period 1980-1984 is given in tables 1 A and B. The contribution of ^{60}Co to the total $\beta\gamma$ -activity is an indication for the relative importance of the external exposure from the sediments, because of the high sorption capacity and the high γ -radiation energy of this isotope.

The Mol-Neet, a small river, in which the liquid waste is released, has an average flow rate of approximately $1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. It flows into the Grote Neet, 6.8 km downstream the discharge point (fig. 1). The average flow rate of the Grote Neet is approximately $2.5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ downstream the confluence of the two rivers.

Although the Neet river basin is mainly an agricultural area, not much agricultural nor domestic use is made of the water of the Neet river. So, among all possible pathways of exposure of man from the Neet, the external irradiation by sediment deposits is probably the most important and realistic one.

This research has been performed in order to model the distribution of the radionuclides released, between the aqueous and particulate phases of the river water compartment and their transfer from the water compartment to the bed sediment. Sediment sampling campaigns and suspended matter collection have been performed and simple models applied. The investigations have been carried out in the framework of the IAEA Co-ordinated Research Programme on the "Role of Sediments in Transport and Accumulation of Radionuclides in Waterways"; the final meeting of which took place in December 1985. Background information concerning this research programme and a list of IAEA-contractors and associated participants involved, are given in Appendix 1.

1. Modelling Methodologies

1.1. Concentrations

In the Neet river, two "active" compartments are being considered :

- the water compartment
- the "active" bed sediment layer (Fig. 2)

1.1.1. In the water compartment, the radionuclides are distributed between the aqueous phase (in solution) and the particulate phase (associated with the suspended matter). This distribution is mostly characterized by the distribution coefficient K_d , which represents the concentration ratio of the radionuclide between the two phases :

$$K_d = \frac{C_m}{C_f} \quad (\text{l.kg}^{-1})$$

with : C_m = the concentration of the radionuclide in the particulate phase (Bq.kg^{-1} dry weight)

C_f = the concentration of the radionuclide in the aqueous phase (Bq.l^{-1})

1.1.2. In the bed-load sediments, the radionuclides transferred from the water compartment, are being accumulated in the "active" layer. In order to model this transfer, two simple methodologies have been considered : the NRC model [1] and the Schaeffer model [2]

- The NRC model, being simpler than the Schaeffer model, has been applied as a first approximation.

In this model, the concentrations of the radionuclides in the upper layer of the bed sediment are derived from the concentrations in the water through a transfer constant K_c and taking into account only radioactive decay in the bed sediment.

$$\text{So } C_{i,s} = C_{i,w} \cdot K_c \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_i t_b}}{\lambda_i}$$

with : $C_{i,s}$: concentration of nuclide i in the upper layer (approximately 2.5 cm) of the bed sediment (Bq.kg^{-1})

$C_{i,w}$: concentration of nuclide i in the water compartment (Bq.l^{-1})

K_c : transfer constant ($632 \text{ l.kg}^{-1}.\text{y}^{-1}$)

t_b : length of time, the sediment is exposed to the contaminated water (nominally 15 y)

λ_i : decay constant of nuclide i (y^{-1})

- The Schaeffer model differs from the NRC model by taking into account :
 - an exponential decrease of the concentration of the radionuclides in the water compartment, due to sedimentation and radioactive decay

$$\text{So } Q_i(x) = a_i e^{-k_i x}$$

with : $Q_i(x)$ = activity of radionuclide i in the water compartment, passing a vertical section of the river at a distance $x(\text{m})$ from the discharge point per unit of time of disposal (Bq.s^{-1})

a_i = activity of radionuclide i discharged per unit of time (Bq.s^{-1})

k_i = constant, characterizing the exponential decrease due to sedimentation and radioactive decay (m^{-1})

k_{oi} = constant, characterizing the exponential decrease due to sedimentation only. (m^{-1})

- a translation of the "active" bed sediment layer, with an average velocity v (m.y^{-1})

The combination of those two phenomena leads to the following expression for the linear concentration of radionuclide i in the "active" bed sediment layer, s_i :

$$s_i = a_i \frac{k_{oi}}{k_i v - \lambda_i} (e^{-\lambda_i x/v} - e^{-k_i x}) \quad (\text{Bq.m}^{-1})$$

for t = duration of discharge $\geq x/v$

$$\text{and with a maximum } s_{im} \text{ at a distance } x_m = \frac{\ln \left(\frac{k_i v}{\lambda_i} \right)}{k_i - \frac{\lambda_i}{v}}$$

The variation of s_i with distance x , for various durations of discharge t , is depicted in Fig. 3.

1.2. Dose rates

- The NRC model proposes the following expression for the external irradiation by "shoreline" deposits

$$R_{\text{shore},i} = C_{i,s} \cdot \rho_s \cdot W \cdot DF_i \quad (\text{Sv.y}^{-1})$$

with $R_{\text{shore},i}$ = dose rate, due to exposure to radionuclide i in shoreline sediments

ρ_s = "effective" surface mass of the shoreline-sediments
(40 kg.m⁻²)

W = shore width factor (= 0,2 for rivers)

DF_i = dose rate factor for external irradiation from a ground-plane, uniformly contaminated with radionuclide i
(Sv.y⁻¹ per Bq.m⁻²)

- More complicated, theoretical calculation methods, to be used in connection with the Schaeffer-model, are given in [2] and [4]. However, Hunt [3] represents simplified calculation methods, which have been verified by field experiments. For the case of "sandy beaches", the resulting dose rates in air were related directly to the activity concentrations in the bed sediment and the γ -radiation energies involved. For the case of river banks, a reduction factor (W) for the restricted geometry has to be applied and the effect of surface roughness may be accounted for by a shielding factor (SF). Finally, the dose rates in air are converted in effective or whole-body dose equivalent rates by a factor of 0.87 Sv.Gy⁻¹

The resulting equation becomes :

$$D_i = 0.16 \cdot 10^{-12} \cdot C_i \cdot E_i \cdot W \cdot SF \cdot 0.87 \text{ sv.h}^{-1}$$

with D_i = effective dose equivalent rate, due to exposure to radionuclide i , with γ -radiation energy E_i (MeV/ γ) and concentration C_i (Bq.m⁻³) in the shoreline sediments

The resulting dose rate per unit concentration of a radionuclide i may not be compared directly with the result of the NRC-expression because of the different depths of the sediment layer involved.

In the NRC equation, only the concentration in the upper 2.5 cm of the sediment is considered ($C_{i,s}$). In the equation derived from [3], a more uniform concentration over several tens of cm is meant, such as s_i in the Schaeffer model.

So the "Hunt equation" will be applied only in connection with the

$$\text{Schaeffer model, with } C_i = \frac{S_i}{b \cdot h} \quad (\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3})$$

b being the width of the river (m)

h the depth of the "active" bed sediment layer (m)

2. Experiments and Results

2.1. Suspended matter

Sampling of the suspended matter in the riverwater of the Mol-Neet and Grote Neet has been performed during the spring of 1984. The suspended matter was collected over 24 h at the sampling stations MN5 and MN9 (Fig. 4) by centrifugation, using a "Westfalia KDD 604" continuous centrifugal separator. Part of the centrifugated water was passed through a "S & S 589/3" paper filter to remove the very fine particles, left in the water after centrifugation. Those particles represented about one fourth of the total mass of the suspended matter. The activity present in the collected particulate matter and water samples was measured in the laboratory: ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb , ^{54}Mn , ^{106}Ru by γ spectrometry and ^{90}Sr , $\text{Pu}(\alpha)$, ^{241}Am by radiochemical analysis (chemical extraction followed by α or β -counting). Activity distributions and concentration ratios between the particulate and aqueous phases of the water compartment have been determined; the results are shown in tables 2 and 3. The concentration ratios $K_d = C_m/C_f$ (distribution coefficient, cfr. par. 1.1.1.) are indicated with and without filtration included, since potential adsorption of dissolved radionuclides on the filters could lead to erroneous results.

2.2. Sedimenting matter

Sedimenting matter has been collected at different sampling stations during the spring in 1976 (at MN2, MN5, MN91), in the autumn of 1979 (at MN5) and from June 1984 to June 1985 (at MN5, MN91) (Fig. 4). Stainless-steel or PVC sediment trays (30 cm x 30 cm) were used, covered with a perforated plate in order to avoid resuspension of the sedimented material. The trays were removed from the riverbed every two weeks.

Concentration ratios between the collected solids and the total water

compartment are shown as $K = \frac{C_m}{C_w}$ in table 4. Mean values for K at station

MN2 were determined from the measurements in 1976 and for K at stations MN5 and MN91 from the measurements at 1984-1985. Monthly values measured at MN5 and MN91 from June 1984 to June 1985 are given in [5]. The concentrations in the total water compartment were calculated from the monthly discharged activities and the mean flow rate at the sampling station.

Values for the distribution coefficient $K_d = \frac{C_m}{C_f}$, also shown in table 4,

were obtained by dividing the K-values through the factor $\frac{C_f}{C_w} = 1 - M_s k$,

where M_s is the concentration of suspended matter in the water compartment. This factor however gave rise to negative K_d values for Pu and Am at stations MN5 and MN91.

2.3. Bed sediment

Bed sediment sampling campaigns have been performed in 1978, 1979, 1980 and 1983. Sediment core samples were taken at various sampling stations with a "Kahlsico" boat operated coring tube (No 217 WA 070) to depths of 40 cm and divided into layers from 0 to 10 cm, 10 to 20 cm, and 20 to 40 cm.

In 1983, sediment sampling has been performed at stations MN1, MN3, MN5, MN6 and MN9 (Fig. 4). The concentrations, measured at MN1, upstream the discharge point of S.C.K./C.E.N., are indicated directly in $Bq.kg^{-1}$ dry sediment in table 5A. The results for the other sampling stations are expressed as concentration ratios between the dry sediment and the riverwater in table 5B. The concentrations in the riverwater were calculated from the activities discharged into the river and the water flow rate, averaged over 12 months preceding the sediment sampling campaign. The determination of the tritium activity of the solid samples was performed by measuring the activity of their combustion water.

3. Discussion

3.1. Distribution in the water compartment

The concentration ratios between the particulate and aqueous phases (or distribution coefficients) are similar for the suspended matter and for the sedimenting matter, as shown in tables 3 and 4.

The α -emitters, Pu and Am, are highly sorbed on particulate matter, followed, in order of decreasing affinity by Cs, Mn and Co. Sb and Sr have a very poor affinity for particulate matter. This is also illustrated in table 2, showing that most of the α -activity discharged is associated with the suspended matter (and mainly in the fraction separated by the centrifuge), whilst most of the $\beta\gamma$ activity discharged is in the dissolved form, only ^{137}Cs and ^{54}Mn being present for 50 % or more in the total suspended matter.

The values for the distribution coefficient, derived from the suspended matter, with and without filtration included, are not very different (except for ^{54}Mn). However neither is fully correct. The value, calculated without taking filtration into account is not representative, since the activity attached to some fine particles is attributed to the aqueous phase. The value, determined with filtration included, may be erroneous due to the potential adsorption of dissolved radionuclides on the filter.

The strong decrease of K_d -values with distance (values at MN5 versus MN91) for sedimenting matter can be explained by the progressive radionuclide depletion of the water compartment by adsorption on suspended matter and subsequent sedimentation, the concentration of the radionuclides in the aqueous phase, calculated from the activities discharged, being not corrected for the depletion phenomenon. For the suspended matter, the differences of K_d -values with distance (station MN9 versus MN5) are not significant. In table 10 the average (or most reliable) K_d -values for suspended matter are summarized.

3.2. Transfer to the bed sediment

3.2.1. Application of the NRC model

Measured values of the normalized concentrations in the bed sediment $\left(\frac{C_{i,s}}{C_{i,w}}\right)$

have been used to verify the applicability of the NRC model on the Neet river.

According to the NRC model, these normalized concentrations are given by :

$$\frac{C_{i,s}}{C_{i,w}} = K_c \frac{1 - e^{-\lambda_i t_b}}{\lambda_i} \quad (\text{see par. 1.1.2})$$

Measured values of $\frac{C_{i,s}}{C_{i,w}}$ are being compared with the calculated values of

$$K_c \cdot \frac{1 - e^{-\lambda_i t_b}}{\lambda_i}, \text{ for several values of } t_b, \text{ namely}$$

for $t_b = 15$ years (nominal value in NRC model),

for $t_b = 1$ year

and $t_b = X$ years, the time needed by the bed sediment to cover the distance between the discharge point and the sampling point, with an average velocity $v \sim 1 \text{ km.y}^{-1}$ (see par. 3.2.2).

The last two values of t_b were considered in order to take into account some reduction of the time length of exposure of the sediment, due to the movement of the "active" sediment layer.

The values of $C_{i,s}$ measured, related to the top 10 cm of the bed load sediment, instead of the upper 2.5 cm, giving rise to a maximum theoretical error in the concentrations $C_{i,s}$ of a factor 4; the actual differences however are much smaller.

Values for $C_{i,w}$ were derived from the quantities discharged in the Mol-Neet and the flow rates of the Neet river. These values were averages over the time length t_b considered, in the period preceding the sediment sampling. However values were only available since 1976.

Tables 6A and 6B show the calculated and measured values, for the sediment sampling campaigns of 1983 and 1980. The differences are the smallest for the case $t_b = 1$ year; rising to several orders of magnitude for the cases $t_b = X$ years or $t_b = 15$ years.

3.2.2. Application of the Schaeffer model

- Sedimentation constant k_{oi}

The results of the sedimenting matter sampling campaigns have been used to calculate values for the sedimentation constants k_{oi} , applying the expression :

$$S_i(x) = \frac{dQ_i(x)}{dx} \cdot \frac{1}{a_i} = k_{oi} e^{-k_{oi}x} \quad (m^{-1})$$

With $S_i(x)$ = the fraction of the quantity of radionuclide i discharged, that is sedimenting out of the water compartment, per unit length of the river at a distance x from the discharge point.

At sampling stations MN2 and MN5, k_{oi} values were calculated directly from the values of S_i , obtained from the sedimenting matter sampling experiments. Values of S_i are indicated in table 7, calculated values of k_{oi} in table 8 (for MN5 : values "without corrections").

At station MN5, for some radionuclides with high distribution coefficients (e.g. Pu and Cs), the maximum values of the expression $k_{oi} e^{-k_{oi}x}$ (obtained for $k_{oi} = 1/x$) were still lower than the S_i -values measured. So, for these radionuclides the k_{oi} values could not be calculated directly and only best-fit values are given.

At sampling station MN9 the same anomaly was observed, for radionuclides with lower distribution coefficients too. The phenomenon is probably due to the variability of the k_{oi} -values along the river, the values at stations MN5 and MN9 being higher than in river parts upstream.

In order to obtain more reliable k_{oi} -values at MN5, the Neet river between the discharge point and this station was divided into two parts, according to their physical characteristics. The outlet of the first part (3000 m downstream the discharge point) constituted the source for the second part. So modified values for S_i (and x_i) were obtained at MN5, which gave rise to the k_{oi} -values indicated in table 8 as "corrected values" at MN5. For sampling stations MN9 and MN91, more parts are to be considered, the adaptations are not carried out yet.

In agreement with [2], radionuclides with high K_d -values also show high k_{oi} -values. Considering only the $\beta\gamma$ -nuclides at station MN5, a power correlation with $R^2 = 0.97$ was obtained between the two values. The application of this correlation on K_d -values for Pu and Am gave rise to k_{oi} values of $3.4 \cdot 10^{-4} m^{-1}$ and $7.9 \cdot 10^{-4} m^{-1}$ respectively at station MN5 and $2.0 \cdot 10^{-4} m^{-1}$ and $5.0 \cdot 10^{-4} m^{-1}$ respectively at station MN2.

It has to be noticed that the k_{oi} -values, determined here, are high compared to the values shown in [2]. This may be due to the low water velocities in the Neet, to which the k_{oi} -values are inversely proportional and to the fact that resuspension from the sediment trays was prevented by perforated plates.

In table 10 the average, or most reliable, k_{oi} -values are summarized. At station MN2, the k_{oi} -value observed for ^{124}Sb is also attributed to ^{125}Sb , at station MN5, the average of the values observed for ^{124}Sb and ^{125}Sb are attributed to both radionuclides.

- Bed sediment concentrations

As a way of validation of the modelling methodology applied, measured and calculated values of the normalized linear concentrations in the upper 30 cm layer of the bed sediment have been compared. Only the bed sediment sampling campaigns of 1978, 1979 and 1980 were taken into account, the fairly constant discharge rates of $\beta\gamma$ -nuclides in the period 1977-1980 favouring this comparison exercise.

In table 9 :

$\frac{s_i}{a_i}$ represents the measured values of the normalized linear concentrations

$$F_i = \frac{k_{oi}}{k_i v - \lambda_i} (e^{-\lambda_i x/v} - e^{-k_i x})$$

stands for the calculated

values of the normalized linear concentrations (with $k_{oi} \approx k_i$)

The measured values of the linear concentrations s_i ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-1}$) were obtained by multiplying the measured concentrations (by mass) with the mass of the upper 30 cm layer of the bed sediment per unit length of the river at the sampling station concerned.

The discharge rates a_i ($\text{Bq}\cdot\text{y}^{-1}$) were averaged over the periods concerned, radioactive decay being taken into account.

In order to calculate values for F_i , the translation velocity of the "active" bed sediment v and the sedimentation constants k_{oi} had to be determined.

The values for k_{oi} were taken from table 10, assuming that the k_{oi} -values at stations MN2 and MN3 were fairly equal. The value for v , $1 \text{ km}\cdot\text{y}^{-1}$, was estimated from the positions of the maximum concentrations of the nuclides of Cs and Co in the bed sediment. The low value for v is due to the small water depth and the small slope of the river bed.

The F_i -values at station MN5 had to be determined in two steps, calculating F_i for the two parts of the river consecutively, taking into account the radioactive decay of the radionuclides, deposited in the first part and translated into the second one.

At both stations MN3 and MN5 a good correspondence is observed between the calculated and measured concentration values for the $\beta\gamma$ -radionuclides ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{90}Sr , ^{125}Sb and ^{54}Mn ; a poor correspondence is observed for the transuranium elements Pu (only at MN3) and especially ^{241}Am . This poor correspondence may be explained by an underestimation of the k_{oi} -values for Pu and Am. Applying the k_{oi} -values, derived from the K_d -values for Pu and Am by the power correlation, mentioned in par. 3.2.2., F_i -values of $1.6 \cdot 10^{-4} \text{ y.m}^{-1}$ and $5.6 \cdot 10^{-4} \text{ y.m}^{-1}$ respectively for Pu and Am at station MN3 and of $5.8 \cdot 10^{-4} \text{ y.m}^{-1}$ and $8.7 \cdot 10^{-4} \text{ y.m}^{-1}$ respectively at station MN5 are obtained, resulting in a much better correspondence with the s_i/a_i values measured.

It is also to be noticed that the quantities of Pu and Am being discharged yearly into the Neet are constantly diminishing since 1978.

3.3. External dose rates

3.3.1. NRC model

Another interesting way of verifying the applicability of the NRC model consists in comparing calculated and measured dose rate values, since the NRC model is primarily intended to facilitate estimates of the γ -exposure rates, above shoreline sediments.

- The expression for the calculation of dose rates due to the external irradiation by "shoreline deposits", following the NRC model, is given in par. 1.2. From the average composition of the $\beta\gamma$ -activity of the liquid discharges into the Neet, it can be concluded that more than 99 % of the total body external dose rate is due to ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{134}Cs ; ^{60}Co accounting for approximately 88%, ^{137}Cs for 9 % and ^{134}Cs for 3 %.

Designating the total body dose rate by R_{shore} :

$$R_{\text{shore}} = \sum_i R_{\text{shore},i} = R_{\text{shore}}(^{60}\text{Co}) + R_{\text{shore}}(^{137}\text{Cs}) + R_{\text{shore}}(^{134}\text{Cs})$$

$$\text{and with } C_w = \sum_i C_{i,w} = C_w(^{60}\text{Co}) + C_w(^{137}\text{Cs}) + C_w(^{134}\text{Cs})$$

$$\text{and } K_i = K_c \left(\frac{1 - e^{-\lambda_i t_b}}{\lambda_i} \right) \rho_s \cdot W \cdot DF_i \text{ for } i: \begin{matrix} ^{60} \\ \text{Co}, \end{matrix} \begin{matrix} ^{137} \\ \text{Cs}, \end{matrix} \begin{matrix} ^{134} \\ \text{Cs}, \end{matrix} \text{ Cs}$$

A normalized total-body dose rate can be expressed in the following way :

$$\frac{R_{\text{shore}}}{C_w} = \frac{C_w(^{60}\text{Co})}{C_w} K(^{60}\text{Co}) + \frac{C_w(^{137}\text{Cs})}{C_w} K(^{137}\text{Cs}) + \frac{C_w(^{134}\text{Cs})}{C_w} K(^{134}\text{Cs})$$

Calculated values for $C_{w,i}$ and K_i were obtained in the same way as in par. 3.2.1.

- Measurements of the external dose rates due to "shoreline deposits" are being carried out at different places along the Neet (i.e. at sampling stations MN3, MN5 and MN7) since 1979. Thermoluminescent (LiF) dosimeters are used, placed at a height of 1 m above the river bank, and changed every three months. The dosimeters are shielded with 730 mg.cm^{-2} , bringing about an energy absorption, approximately 12 % less than the 5 cm average depth of the bloodforming organs, adopted in [1] for the determination of the dose rate factor DF_1 .

In order to obtain net dose rates, only due to the discharges into the Neet, background values, measured upstream the discharge points were subtracted from the downstream values.

Normalized dose rates, that are to be compared with the calculated values

$$\frac{R_{\text{shore}}}{C_w},$$

were obtained by dividing the net dose rates by C_w .

- Measured and calculated values of the normalized total body dose rate are indicated in table 11. The values calculated in each sampling station do not differ much, when equal values for t_b are considered, since they are only dependent on the relative contributions of the three isotopes to the total concentration in the water, those contributions being nearly equal over the periods considered. A better agreement is observed than for the normalized concentrations in the bed sediment. The best agreement is, again, obtained for $t_b = 1 \text{ y}$, the largest difference between calculated and measured values in this case amounting to a factor of 2.5.

3.3.2. Schaeffer model

The applicability of the Schaeffer model has also been verified by comparing calculated and measured external dose rate values from the bed sediments.

- Calculated values were obtained, applying the simplified method, indicated in par. 1.2, with a shore width factor $W = 0.2$ and a shielding factor $SF = 0.7$

The resulting equation for the whole body dose rate then becomes :

$$D_i = 1.93 \cdot 10^{-14} \frac{S_i}{b \cdot h} E_i \quad (\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1})$$

Normalizing the dose rate values in relation to the quantities of radionuclides discharged, leads to the expression :

$$\frac{D_i}{a_i} = 1.93 \cdot 10^{-5} \cdot \frac{F_i \cdot E_i}{b \cdot h} \quad (\text{nSv} \cdot \text{h}^{-1} / \text{Bq} \cdot \text{y}^{-1})$$

With $D = \Sigma D_i = D(^{60}\text{Co}) + D(^{137}\text{Cs}) + D(^{134}\text{Cs})$

and $a = \Sigma a_i = a(^{60}\text{Co}) + a(^{137}\text{Cs}) + a(^{134}\text{Cs})$

A normalized total dose rate can be expressed as :

$$\frac{D}{a} = \frac{\Sigma D_i}{\Sigma a_i} = \frac{1.93 \cdot 10^{-5}}{b \cdot h \cdot a} \left((a \cdot F \cdot E)_{^{60}\text{Co}} + (a \cdot F \cdot E)_{^{137}\text{Cs}} + (a \cdot F \cdot E)_{^{134}\text{Cs}} \right)$$

The values of F_i are indicated in table 9.

The quantities a_i were determined according to par. 3.2.2.

- The comparison of calculated and measured dose rate values has been carried out for the two stations, where F_i values have been determined, namely for MN3 and MN5.

In those two stations : $b = 4$ m (MN3) and 5 m (MN5) and $h = 0.3$ m.

The net dose rate values, measured by TLD in those two stations were divided by a_i , the quantities discharged, in order to obtain the normalized values D/a measured.

- Measured and predicted values of the normalized total body dose rates are indicated in table 12. The predicted values show only minor differences at each sampling station since they are only dependent on the relative contributions of the three isotopes to the total quantities discharged, those contributions being nearly equal over the periods considered. The differences with the measured values are fairly small (maximum a factor of 3.5), bearing in mind that no allowance was made for the variations of the flow rate of the Neet river.

4. Conclusions

The distribution of the radionuclides, discharged in the Neet river, between the aqueous phase and the solid phase, is characterized by the distribution coefficient K_d . High values have been obtained for the α -emitters Pu and Am (10^5 - 10^6 l.kg⁻¹), low values for Sr and Sb (10^2 - 10^3 l.kg⁻¹).

For the estimation of the radionuclide concentrations in, and external dose rates from, the bed sediments in the Neet river, simple predictive models have proved to be very useful. By adapting some characteristic parameter values in these models to the Neet river situation, the results obtained were in good agreement with measured values.

After reducing the time length of exposure of the sediments in the NRC model, a better agreement was obtained than with the Schaeffer model.

This may be due to the fact that the NRC model is more suited for limited river distances and time periods of discharge. Also the introduction of radionuclide concentrations in the water instead of discharged quantities reduces the transfer uncertainties.

For further extensions in distance and time, the Schaeffer model seems to be more promising than the NRC model, since the former is taking into account the depletion of the radionuclides out of the water column, due to sedimentation and the translation of the mobile bed sediment layer.

Table 1A : Relative composition of the $\beta\gamma$ -activity of the liquid discharges of the S.C.K./C.E.N. (%)

	1980	1981	1982	1983	1984	Average
⁶⁰ Co	65	62	57	49	45	56
¹³⁷ Cs	9.2	26	20	18	7.3	16
¹³¹ I	5.6	2.0	1.6	7.2	11	5.5
¹⁰⁶ Ru	5.5	0.4	4.1	2.3	8.7	4.2
⁵⁸ Co	1.4	0.4	1.6	8.3	9.4	4.2
¹²⁵ Sb	6.4	1.8	4.7	3.7	3.8	4.1
⁹⁰ Sr	2.4	1.6	2.0	3.0	3.8	2.6
¹³⁴ Cs	1.2	3.8	2.4	2.6	1.9	2.4
¹²⁴ Sb	1.6	0.4	0.4	2.0	3.1	1.5
⁵¹ Cr	(1)	0.1	0.6	1.2	2.9	1.0
⁵⁴ Mn	0.6	1.0	0.5	0.9	1.7	0.9
¹⁰³ Ru	(1)	0.3	3.4	0.4	0.1	0.8
⁶⁵ Zn	(1)	0.5	0.6	1.0	0.1	0.4

(1) < 0.1

Table 1B : Relative composition of the α -activity of the liquid discharges of S.C.K./C.E.N. (%)

	1980	1981	1982	1983	1984	Average
Pu(α)	60	75	51	52	(1)	60
²⁴¹ Am	15	15	37	28	(1)	24
U	25	8.6	12	20	(1)	16
²²⁶ Ra	0.4	1.3	0.6	0.5	(1)	0.7

(1) No analyses because of too low quantities discharged.

Table 2 : Activity distributions between particulate and dissolved fractions (%)

Sampling station	MN5			MN9		
	Particulate fraction (separator) (1)	Fine particulate fraction (2)	Dissolved fraction (3)	Particulate fraction (separator) (1)	Fine particulate fraction (2)	Dissolved fraction (3)
⁶⁰ Co	16	25	59	15	22	63
¹³⁷ Cs	43	12	45	31-35	< 12	58-65
¹²⁵ Sb	~ 1.5	< 16	82-98			
¹²⁴ Sb	~ 0.6	< 19	80-99	~ 0.5	< 24	75-99
⁹⁰ Sr	1.4	1.0	98	4.1	1.3	95
⁵⁴ Mn	7	67	26	7-17	35-83	< 58
¹⁰⁶ Ru	~ 11	< 15	75-88			
Pu (α)	74	10	16	62	7	31
²⁴¹ Am	71	25	4	83	13	5

Percentages of the activity concentrations of the individual radionuclides in the river water, associated with :

(1) suspended matter, collected by the centrifugal separator

(2) suspended matter, passing through the separator, collected on filter paper (+ potential adsorption of dissolved radionuclides)

(3) centrifugated and filtered water

Table 3 : Concentration ratios (distribution coefficient K_d) ($1.kg^{-1}$)
Suspended matter

Sampling station	Centrifugation		Centrifugation+Filtration	
	MN5	MN9	MN5	MN9
^{60}Co	$1.4 \cdot 10^4$	$1.2 \cdot 10^4$	$2.9 \cdot 10^4$	$2.2 \cdot 10^4$
^{137}Cs	$5.1 \cdot 10^4$	$2.7 \cdot 10^4$	$5.1 \cdot 10^4$	$< 2.7 \cdot 10^4$
^{125}Sb	$9.0 \cdot 10^2$	$> 1.1 \cdot 10^3$	$< 8.7 \cdot 10^3$	
^{124}Sb	$3.7 \cdot 10^2$	$2.6 \cdot 10^2$	$< 1.0 \cdot 10^4$	$< 1.2 \cdot 10^4$
^{90}Sr	$7.8 \cdot 10^2$	$2.1 \cdot 10^3$	$1.0 \cdot 10^3$	$2.1 \cdot 10^3$
^{54}Mn	$1.5 \cdot 10^4$	$> 6.3 \cdot 10^3$	$1.2 \cdot 10^5$	$> 2.8 \cdot 10^4$
^{106}Ru	$7.4 \cdot 10^3$	$> 9.9 \cdot 10^3$	$< 1.4 \cdot 10^4$	
$Pu(\alpha)$	$2.5 \cdot 10^5$	$1.0 \cdot 10^5$	$1.9 \cdot 10^5$	$7.9 \cdot 10^4$
^{241}Am	$\alpha \cdot 1.0 \cdot 10^6$	$8.8 \cdot 10^5$	$9.0 \cdot 10^5$	$7.2 \cdot 10^5$
		\leq	\leq	\leq

Table 4 : Concentration ratios ($1.kg^{-1}$)
Sedimenting matter

Sampling station	$K = C_m/C_w$			$K_d = C_m/C_f$		
	MN2	MN5	MN91	MN2	MN5	MN91
^{60}Co	$5.7 \cdot 10^3$	$6.6 \cdot 10^3$	$1.6 \cdot 10^3$	$6.9 \cdot 10^3$	$8.3 \cdot 10^3$	$1.7 \cdot 10^3$
^{137}Cs	$1.4 \cdot 10^4$	$2.2 \cdot 10^4$	$7.1 \cdot 10^3$	$2.4 \cdot 10^4$	$6.2 \cdot 10^4$	$9.0 \cdot 10^3$
^{134}Cs	$1.5 \cdot 10^4$	$1.1 \cdot 10^4$	$3.0 \cdot 10^3$	$2.7 \cdot 10^4$	$1.6 \cdot 10^4$	$3.2 \cdot 10^3$
^{125}Sb	$5.0 \cdot 10^3$	$1.6 \cdot 10^3$	$8.1 \cdot 10^2$	$5.9 \cdot 10^3$	$1.7 \cdot 10^3$	$8.3 \cdot 10^2$
^{124}Sb	$1.9 \cdot 10^3$	$2.2 \cdot 10^2$	-	$2.0 \cdot 10^3$	$2.3 \cdot 10^2$	-
^{90}Sr	$1.8 \cdot 10^3$	$5.8 \cdot 10^2$	$1.6 \cdot 10^2$	$1.9 \cdot 10^3$	$5.9 \cdot 10^2$	$1.7 \cdot 10^2$
^{54}Mn	$2.5 \cdot 10^4$	$8.6 \cdot 10^3$	$2.2 \cdot 10^3$	$1.0 \cdot 10^5$	$1.2 \cdot 10^4$	$2.3 \cdot 10^3$
^{106}Ru	$1.8 \cdot 10^4$	$1.3 \cdot 10^3$	-	$3.9 \cdot 10^4$	$1.3 \cdot 10^3$	-
$Pu(\alpha)$	$3.1 \cdot 10^4$	$1.4 \cdot 10^5$	$5.4 \cdot 10^4$	$4.4 \cdot 10^5$	neg.	neg.
^{241}Am	$2.9 \cdot 10^4$	$1.1 \cdot 10^5$	$7.9 \cdot 10^4$	$2.2 \cdot 10^5$	neg.	neg.

Table 5A : Activity concentrations in the bed-load sediment of the Mol-Neet upstream the discharge point of the S.C.K./C.E.N. pipe-line.

Sampling station : MN1 (- 2.2 km from discharge point)

Concentrations : in Bq.kg⁻¹ dry sediment

Sampling depth (cm)	0 - 10	10 - 20	20 - 40
²²⁶ Ra	19	10	4.8
²²⁸ Th	6.7	7	9.2
²³² Th	16	5	11
¹³⁷ Cs	2.4	< 1.5	< 2
⁹⁰ Sr	1.2	0.5	0.37
Po	46	13	15
U	11	5	10
Pu(α)	21	≤ 5	10
²⁴¹ Am	≤ 5	≤ 5	≤ 5
HTO (1)	≤ 10	14	≤ 10
³ H (2)	0.74	1.1	28
³ H (3)	32	59	230

(1) HTO in distillate (in Bq.l⁻¹ distillate)

(2) Organically bound tritium (in Bq.kg⁻¹ dry sediment)

(3) idem (in Bq.l⁻¹ combustion water)

Table 5B : Activity concentrations in the bed-load sediment of the Neet river relative to the activity concentrations added to the river water by the discharges of S.C.K./C.E.N. ($\frac{\text{Bq.kg}^{-1} \text{ dry sediment}}{\text{Bq.l}^{-1} \text{ river water}}$)

Sampling station	MN3			MN5			MN6			MN9		
	0-10	10-20	20-40	0-10	10-20	20-40	0-10	10-20	20-40	0-10	10-20	20-40
Sampling depth (cm)												
^{60}Co	13	1.0	1.3	146	32	13	24	23	19	122	7.4	< 3.0
^{137}Cs	92	6.9	4.0	306	69	31	205	150	31	300	28	6.7
^{134}Cs	55	ND	ND	133	29	9.7	110	52	11	174	ND	ND
^{125}Sb	<2.6	ND	ND	ND	<26	ND	33	< 28	ND	108	ND	ND
^{90}Sr	3.0	1.2	3.9	62	20	7.7	8.0	2.3	0.6	125	81	49
Pu (α)	$4.8 \cdot 10^3$	$1.7 \cdot 10^3$	$\leq 1.4 \cdot 10^3$	$58 \cdot 10^3$	$6.4 \cdot 10^3$	$6.0 \cdot 10^3$	$10 \cdot 10^3$	$11 \cdot 10^3$	$9.9 \cdot 10^3$	$6.0 \cdot 10^3$	$4.8 \cdot 10^3$	$3.2 \cdot 10^3$
^{241}Am	$4.2 \cdot 10^3$	$\leq 1.3 \cdot 10^3$	$\leq 1.3 \cdot 10^3$	$27 \cdot 10^3$	$6.3 \cdot 10^3$	$3.7 \cdot 10^3$	$6.9 \cdot 10^3$	$12 \cdot 10^3$	$7.2 \cdot 10^3$	$6.2 \cdot 10^3$	$2.6 \cdot 10^3$	$< 2.6 \cdot 10^3$
HTO (1)	0.14	0.074	0.045	3.5	1.9	1.9	0.34	0.13	0.11	1.1	1.2	1.3
^3H (2)	0.30	0.10	0.11	3.1	0.50	0.90	1.0	0.77	0.25	2.0	0.49	0.25
^3H (3)	27	14	35	31	10	5.8	24	64	28	7.5	4.0	2.3

ND : not detected in the sediment.

(1) HTO in distillate ($\frac{\text{Bq.l}^{-1} \text{ distillate}}{\text{Bq.l}^{-1} \text{ river water}}$)

(2) Organically bound tritium ($\frac{\text{Bq.kg}^{-1} \text{ dry sediment}}{\text{Bq.l}^{-1} \text{ river water}}$)

(3) Organically bound tritium ($\frac{\text{Bq.l}^{-1} \text{ combustion water}}{\text{Bq.l}^{-1} \text{ river water}}$)

le 6 A : Comparision between calculated and measured concentration ratios $\frac{C_{is}}{C_{iw}}$ ($l.kg^{-1}$) - NRC model

	Calculated ratios	Measured ratios								
		1983				1980				
		MN3	MN5	MN6	MN9	MN3	MN4	MN5	MN7	MN9
1) $t_b = 15$ years										
^{60}Co	$4.1 \cdot 10^3$	9	98	16	83	17	58	460	11	11
^{137}Cs	$8.0 \cdot 10^3$	87	290	190	290	450	220	$1.2 \cdot 10^3$	160	600
^{134}Cs	$1.8 \cdot 10^3$	52	120	100	170	330	110	740	100	320
2) $t_b = 1$ year										
^{60}Co	590	13	150	24	120	310	110	840	24	24
^{137}Cs	620	92	310	200	300	530	270	$1.5 \cdot 10^3$	230	840
^{134}Cs	540	55	130	110	170	390	140	880	140	450

Table 6 B : Comparison between calculated and measured concentration ratios $\frac{C_{is}}{C_{iw}}$ ($1.kg^{-1}$) - NRC model

3) $t_b = X$ years

1) 1983	MN3 (X=1)		MN5 (X=4)		MN6 (X=5)		MN9 (X=15)	
	Calcul.ratio	Meas.ratio	Calcul.ratio	Meas.ratio	Calcul.ratio	Meas.ratio	Calcul.ratio	Meas.ratio
^{60}Co	590	13	$2.0 \cdot 10^3$	100	$2.3 \cdot 10^3$	17	$4.1 \cdot 10^3$	83
^{137}Cs	620	92	$2.4 \cdot 10^3$	270	$3.0 \cdot 10^3$	190	$8.0 \cdot 10^3$	290
^{134}Cs	540	55	$1.4 \cdot 10^3$	110	$1.5 \cdot 10^3$	100	$1.8 \cdot 10^3$	170

2) 1980	MN3 (X=1)		MN4 (X=2)		MN5 (X=4)		MN7 (X=7)		MN9 (X=15)	
	Calcul. ratio	Meas. ratio	Calcul. ratio	Meas. ratio	Calcul. ratio	Meas. ratio	Calcul. ratio	Meas. ratio	Calcul. ratio	Meas. ratio
^{60}Co	590	310	$1.1 \cdot 10^3$	69	$2.0 \cdot 10^3$	520	$2.9 \cdot 10^3$	11	$4.1 \cdot 10^3$	11
^{137}Cs	620	530	$1.2 \cdot 10^3$	260	$2.4 \cdot 10^3$	$1.4 \cdot 10^3$	$4.1 \cdot 10^3$	160	$8.0 \cdot 10^3$	600
^{134}Cs	540	390	920	140	$1.4 \cdot 10^3$	900	$1.7 \cdot 10^3$	100	$1.8 \cdot 10^3$	320

Table 7 : Sedimentation S (m^{-1}) - Schaeffer model

	MN2	MN5			MN91	MN9
	1976	1976	1979	1984-85	1976	1984-85
^{60}Co	$1.7 \cdot 10^{-5}$	$5.8 \cdot 10^{-5}$	$4.3 \cdot 10^{-5}$	$5.5 \cdot 10^{-5}$	$4.1 \cdot 10^{-5}$	$1.7 \cdot 10^{-5}$
^{137}Cs	$3.3 \cdot 10^{-5}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$7.5 \cdot 10^{-5}$	$8.4 \cdot 10^{-5}$
^{134}Cs	$3.7 \cdot 10^{-5}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$9.6 \cdot 10^{-5}$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$7.4 \cdot 10^{-5}$	$3.3 \cdot 10^{-5}$
^{90}Sr	$6.4 \cdot 10^{-6}$	$9.5 \cdot 10^{-6}$	-	$8.7 \cdot 10^{-6}$	$1.4 \cdot 10^{-5}$	$3.2 \cdot 10^{-6}$
^{125}Sb	$1.4 \cdot 10^{-5}$	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$2.1 \cdot 10^{-5}$	$1.5 \cdot 10^{-5}$	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$9.0 \cdot 10^{-6}$
^{124}Sb	$5.0 \cdot 10^{-6}$	$9.3 \cdot 10^{-6}$	$6.6 \cdot 10^{-6}$	$1.0 \cdot 10^{-6}$	$1.3 \cdot 10^{-5}$	
^{54}Mn	$9.3 \cdot 10^{-5}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$6.9 \cdot 10^{-5}$	
Pu (α)	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	-	-	$1.1 \cdot 10^{-4}$	
^{241}Am	$8.5 \cdot 10^{-5}$	$9.5 \cdot 10^{-5}$	-	-	$6.6 \cdot 10^{-5}$	

Table 8 : Sedimentation constants k_0 (m^{-1}) - Schaeffer model

	MN2	MN5 : without corrections			MN5 : corrected values		
	1976	1976	1979	1984-85	1976	1979	1984-85
^{60}Co	$1.7 \cdot 10^{-5}$	$7.8 \cdot 10^{-5}$	$5.3 \cdot 10^{-5}$	$7.2 \cdot 10^{-5}$	$6.3 \cdot 10^{-5}$	$4.6 \cdot 10^{-5}$	$6.0 \cdot 10^{-5}$
^{137}Cs	$3.3 \cdot 10^{-5}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$1.9 \cdot 10^{-4}$
^{134}Cs	$3.8 \cdot 10^{-5}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$2.2 \cdot 10^{-4}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$1.3 \cdot 10^{-4}$
^{90}Sr	$6.4 \cdot 10^{-6}$	$9.8 \cdot 10^{-6}$	-	$9.0 \cdot 10^{-6}$	$9.7 \cdot 10^{-6}$	-	$8.9 \cdot 10^{-6}$
^{125}Sb	$1.4 \cdot 10^{-5}$	$3.2 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-5}$	$1.6 \cdot 10^{-5}$	$3.0 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-5}$	$1.6 \cdot 10^{-5}$
^{124}Sb	$5.0 \cdot 10^{-6}$	$9.6 \cdot 10^{-6}$	$6.7 \cdot 10^{-6}$	$1.0 \cdot 10^{-6}$	$9.5 \cdot 10^{-6}$	$6.7 \cdot 10^{-6}$	$1.0 \cdot 10^{-6}$
^{54}Mn	$9.5 \cdot 10^{-5}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$
$\text{Pu}(\alpha)$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$2.6 \cdot 10^{-4*}$	-	-	$2.4 \cdot 10^{-4}$	-	-
^{241}Am	$8.5 \cdot 10^{-5}$	$2.1 \cdot 10^{-4}$	-	-	$1.4 \cdot 10^{-4}$	-	-

* Best-fit value since $S > \text{Max} (k_0 e^{-k_0 x})$

Table 9 : Normalized linear bed-sediment concentrations ($\gamma \cdot \text{m}^{-1}$) - Schaeffer model

	MN3					MN5				
	s/a				F	s/a				F
	1978	1979	1980	Average		1978	1979	1980	Average	
^{60}Co	$1.6 \cdot 10^{-5}$	$6.4 \cdot 10^{-6}$	$2.1 \cdot 10^{-5}$	$1.2 \cdot 10^{-5}$	$1.4 \cdot 10^{-5}$	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$8.0 \cdot 10^{-5}$	$3.0 \cdot 10^{-5}$	$4.9 \cdot 10^{-5}$	$7.6 \cdot 10^{-5}$
^{137}CS	$3.5 \cdot 10^{-5}$	$1.8 \cdot 10^{-5}$	$4.3 \cdot 10^{-5}$	$3.1 \cdot 10^{-5}$	$2.9 \cdot 10^{-5}$	$1.3 \cdot 10^{-4}$	$2.2 \cdot 10^{-4}$	$1.7 \cdot 10^{-4}$	$1.7 \cdot 10^{-4}$	$1.8 \cdot 10^{-4}$
^{134}Cs	$2.2 \cdot 10^{-5}$	$9.6 \cdot 10^{-6}$	$3.3 \cdot 10^{-5}$	$2.1 \cdot 10^{-5}$	$2.9 \cdot 10^{-5}$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$9.3 \cdot 10^{-5}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$1.3 \cdot 10^{-4}$
^{90}Sr	$1.2 \cdot 10^{-5}$	-	-		$5.7 \cdot 10^{-6}$	-	-	-		
^{125}Sb	$9.6 \cdot 10^{-6}$	$1.4 \cdot 10^{-6}$	$5.1 \cdot 10^{-6}$	$3.8 \cdot 10^{-6}$	$4.0 \cdot 10^{-6}$	$2.6 \cdot 10^{-5}$	$4.2 \cdot 10^{-5}$	$2.1 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-5}$	$1.6 \cdot 10^{-5}$
^{54}Mn	$2.8 \cdot 10^{-5}$	-	-		$5.7 \cdot 10^{-5}$	$3.1 \cdot 10^{-5}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	-		$1.1 \cdot 10^{-4}$
$\text{Pu}(\alpha)$	$4.0 \cdot 10^{-4}$	$2.8 \cdot 10^{-4}$	$5.8 \cdot 10^{-4}$	$4.0 \cdot 10^{-4}$	$9.4 \cdot 10^{-5}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$1.0 \cdot 10^{-3}$	$8.4 \cdot 10^{-4}$	$7.8 \cdot 10^{-4}$	$4.0 \cdot 10^{-4}$
^{241}Am	$6.5 \cdot 10^{-4}$	$3.8 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-3}$	$6.1 \cdot 10^{-4}$	$7.4 \cdot 10^{-5}$	$2.6 \cdot 10^{-4}$	$1.7 \cdot 10^{-3}$	$9.6 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-3}$	$3.1 \cdot 10^{-4}$

Table 10 : Summary : Distribution coefficients K_d ($l.kg^{-1}$)
Sedimentation constants k_0 (m^{-1})

	MN2	MN5		MN9
	k_0 (m^{-1})	k_0 (m^{-1})	K_d ($l.kg^{-1}$)	K_d ($l.kg^{-1}$)
^{60}Co	$1.7 \cdot 10^{-5}$	$5.6 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^4$
^{137}Cs	$3.3 \cdot 10^{-5}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$
^{134}Cs	$3.8 \cdot 10^{-5}$	$1.3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$
^{125}Sb	$5.0 \cdot 10^{-6}$	$1.0 \cdot 10^{-5}$	$9 \cdot 10^2$	-
^{124}Sb	$5.0 \cdot 10^{-6}$	$1.0 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^2$	$3 \cdot 10^2$
^{90}Sr	$6.4 \cdot 10^{-6}$	$9.3 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^2$	$2 \cdot 10^3$
^{54}Mn	$9.5 \cdot 10^{-5}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^4$	-
^{106}Ru	-	-	$7 \cdot 10^3$	-
$Pu(\alpha)$	$1.1 \cdot 10^{-4}$	$2.4 \cdot 10^{-4}$	$2.5 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^5$
^{241}Am	$8.5 \cdot 10^{-5}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^6$	$8 \cdot 10^5$

Table 11 : Comparison between calculated and measured total body external dose rates from shoreline deposits - NRC model

$$\frac{R_{\text{shore}}}{C_w} \left(\frac{\text{nSv.h}^{-1}}{\text{Bq.l}^{-1}} \right)$$

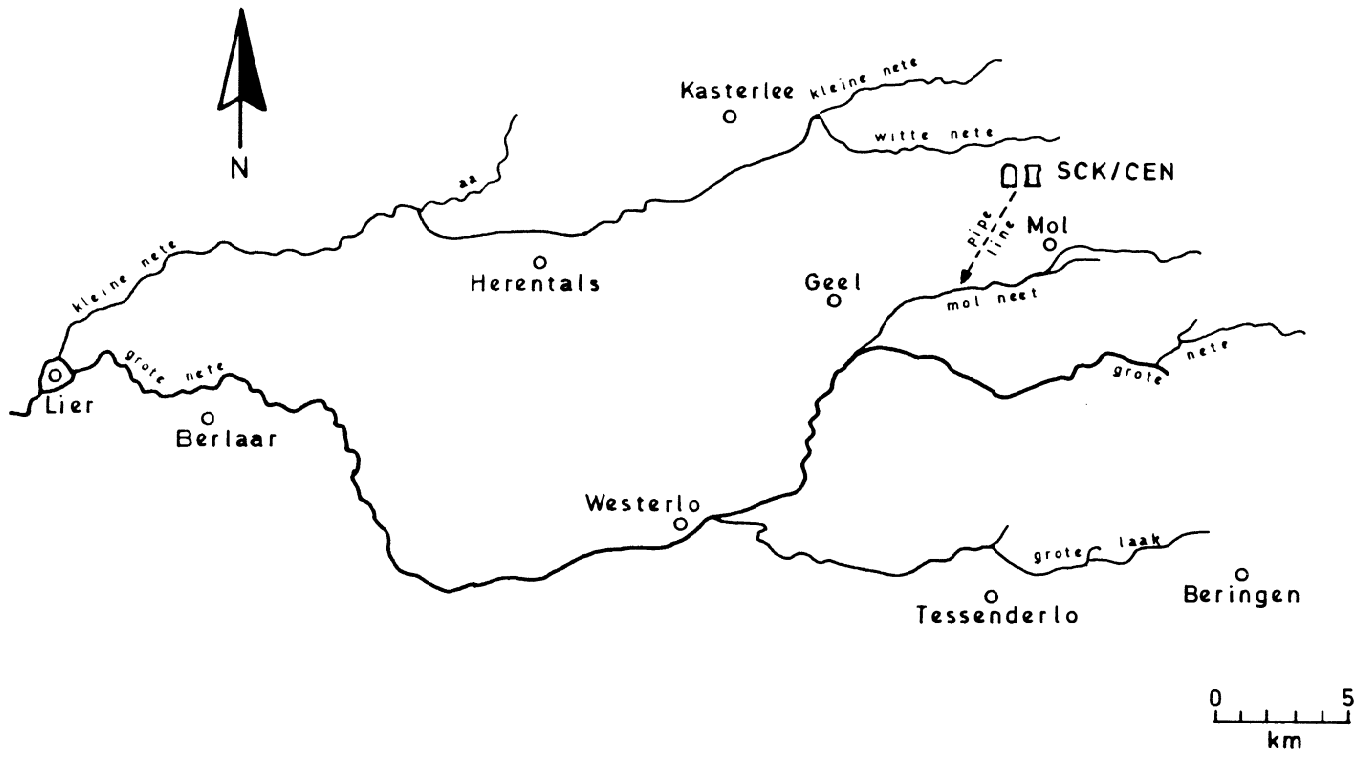
	Exposure period	MN3 (X=1)		MN5 (X=4)		MN7 (X=7)	
		Calcul.value	Meas.value	Calcul.value	Meas.value	Calcul.value	Meas.value
1) 1983	$t_b = 15 \text{ y}$	130	7.1	130	13	130	5.6
	$t_b = 1 \text{ y}$	17	8.0	17	18	17	7.4
	$t_b = Xy$	17	8.0	59	13	89	6.2
2) 1980	$t_b = 15 \text{ y}$	133	10	133	11	130	6.8
	$t_b = 1 \text{ y}$	17	16	17	17	16	17
	$t_b = Xy$	17	16	62	13	89	6.8
3) 1981	$t_b = 1 \text{ y}$	17	6.5	17	11	17	7.7
4) 1982	$t_b = 1 \text{ y}$	17	9.3	17	15	17	7.4

Table 12 : Comparison between calculated and measured total body external dose rates * from bed sediments - Schaeffer model.

$$\frac{D}{a} \left(\frac{\text{nSv.h}^{-1}}{\text{GBq.y}^{-1}} \right)$$

Sampling stat.	MN3		MN5	
	Calcul.value	Meas.value	Calcul.value	Meas.value
1983	0.48	0.27	2.2	0.62
1982	0.50	0.28	2.2	0.66
1981	0.51	0.27	2.2	0.79
1980	0.48	0.72	2.2	1.1

* The calculated and measured dose rates have been normalized with respect to the ^{60}Co -, ^{137}Cs - and ^{134}Cs quantities discharged annually.



275

Fig. 1 : The Neet River.

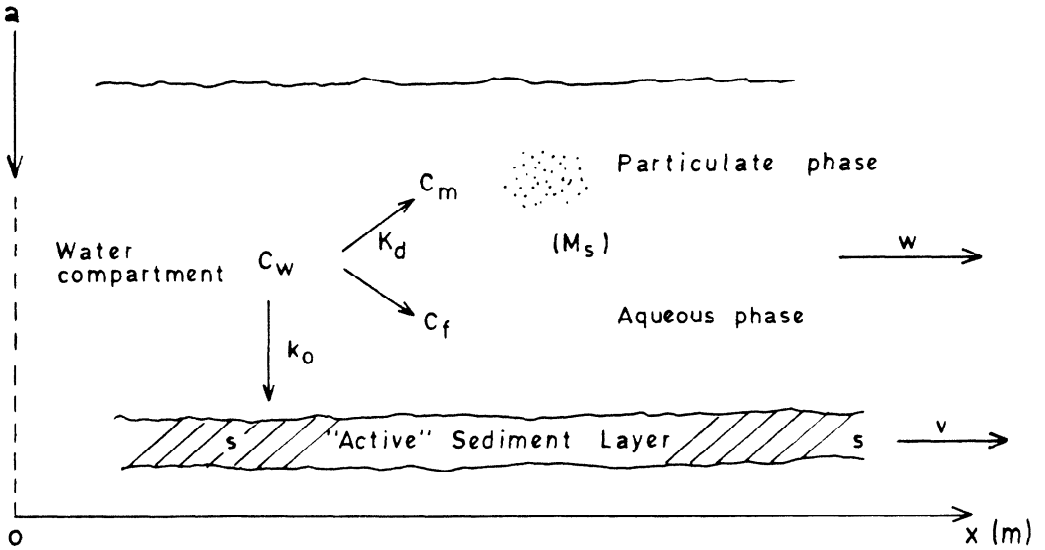


Fig. 2 : Active Compartments of a River.

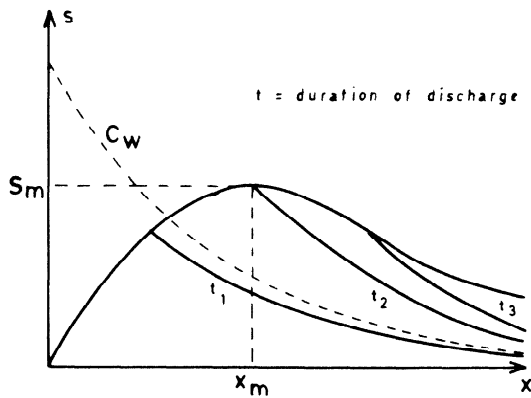


Fig. 3 : Variation with distance x of the linear concentration s .

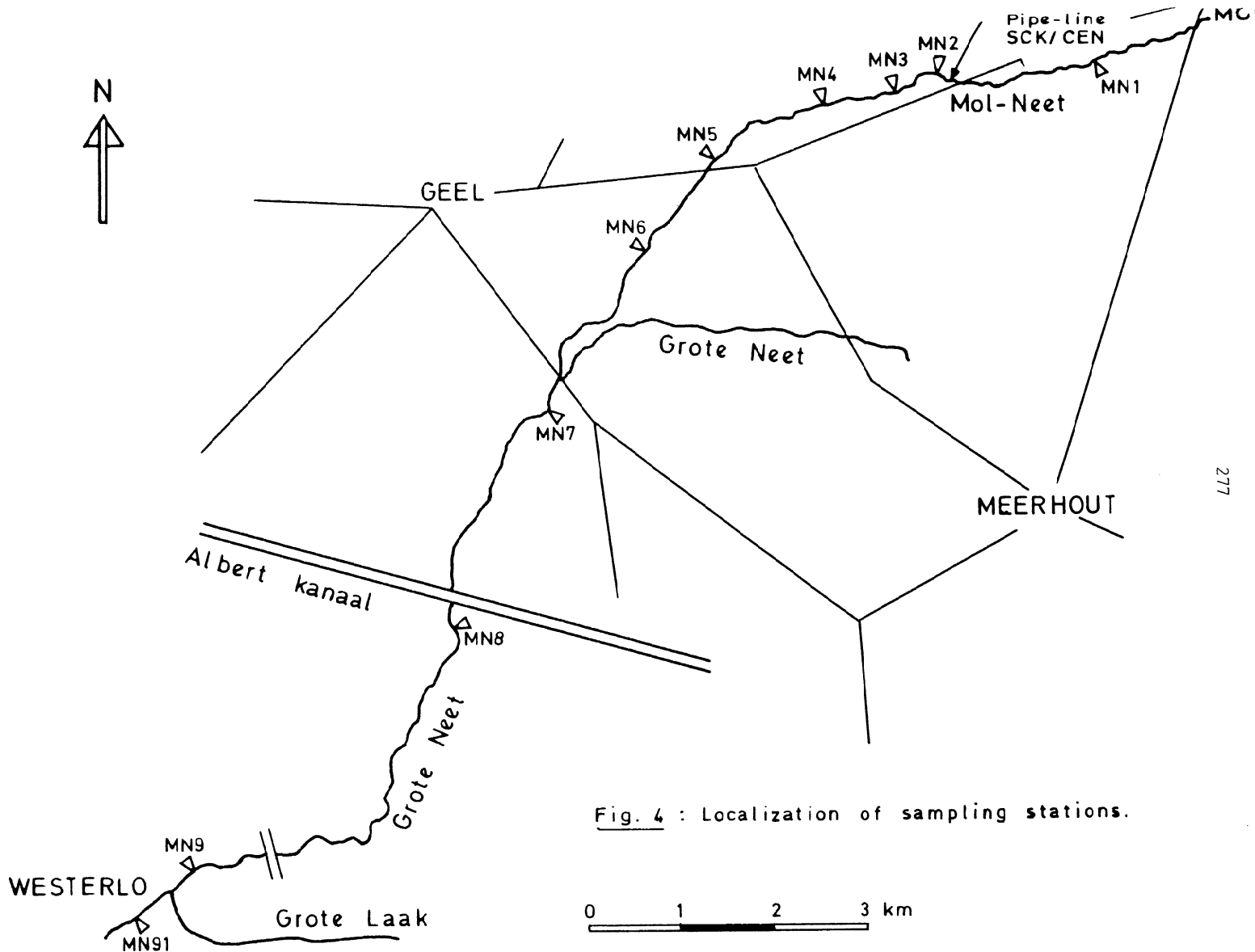


Fig. 4 : Localization of sampling stations.

References

- [1] U.S. Nuclear Regulatory Commission
Regulatory Guide 1.109; Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR part 50 - App.1 (1977)
- [2] R. Schaeffer
Conséquences du déplacement des sédiments sur la dispersion des radio-nucléides
in : "Impacts of Nuclear Releases into the Aquatic Environment"
STI/PUB/406 (1975)
- [3] G.J. Hunt
Simple models for prediction of external radiation exposure from aquatic pathways
Radiation Protection Dosimetry Vol 8 No 4 pp 215-224 (1984)
- [4] CEC Joint Report NRPB - CEA
Methodology for evaluating the radiological consequences of radioactive effluents released in normal operations
CEC Doc No ., 3865/79 - EN,FR (1979)
- [5] Th. Zeevaert, C.M. Vandecasteele, J. Konings, R. Kirchmann, J. Colard, G. Koch
Radiological studies of a river receiving radioactive wastes.
Results of recent field experiments.
presented at the C.E.C. Scientific Seminar on the Application of Distribution Coefficients to Radiological Assessment Models
Louvain-la-Neuve, Oct. '85

ACKNOWLEDGEMENTS

We wish to express our gratitude to the personal of the sections "Phytobiology-Agronomy" (R. Kirchmann) and "Low Level Measurements" (G. Koch) for the sampling of the bed sediment and suspended matter and especially to Mr. F. Staes (section "Low Level Measurements") for the treatment and the distribution of the samples.

The measurements by gamma-spectrometry, carried out by Mr. J. Colard and his personal (section "Nuclear Spectrometry"), and the specific radiochemical analysis performed at the section "Low Level Measurements" (particularly by Mr. C. Hurtgen) were of foremost importance.



A.I.E.A.

Information Sheet

COORDINATED RESEARCH PROGRAMME

Coordinated Research Programme on the Role of Sediments in the Accumulation and Transport of Radionuclides in Waterways.

1. Background

The monitoring of the movement of radionuclides in waterways is often limited to measurements at current and mostly neglects phenomena other than hydrodynamic transport.

Although some incidents have highlighted both the importance and the specific and unexpected nature of the effects of fixation, transport and accumulation of radionuclide on particles in suspension or on sediments in hydrological systems, research work studying these effects or monitoring related data in this field rarely reaches the necessary attention.

Furthermore, although a considerable amount of research into the role and movement of sediments is being carried out for a variety of reasons (controlling the transport and accumulation of chemical or organic pollutants, optimizing the use of river and coastal sediments, preventing the silting-up of reservoirs and navigable waterways), radio-ecological research does not always seem to make full use of the information emerging from these activities.

Taking into account the fact that coordination of this research is a decisive condition of its success, NENF planned the present CRP which moreover aims to instigate transfer of knowledge and stimulation for radioecological research in developing countries.

2. Scientific scope and proposed programme goals.2.1. Scientific scope

Numerous mineral or organic pollutants of nuclear, industrial, agricultural and urban origin are fixed in very fine sediments. The latter are transported in rivers and usually end up along the sea-shore, where they are still subject to the effects of currents and swells. These migrations, during which the particles may cover long distances, are interrupted by periods of rest, when they settle in calm waters (lakes, dams, bays, lagoons.....) or by long periods spent in well-defined geographical zones (estuaries affected by tides, navigation channels, etc.). Due to the physical, chemical and biological action of the local conditions, or through resuspension resulting from natural effects (erosion, turbulence, swell, etc.) or due to human activity (extraction, dredging, opening of dams, etc.), the pollutants attached to the sediments may change over this time into soluble forms or forms that can be taken up by living organisms and then follow pathways that may lead them as far as man.

As a consequence, control of the environment and the policy applied to releases require a good knowledge of the sedimentary dynamics and the

physico-chemical properties of the particles acting as pollutant vectors as well as the biological processes likely to occur at all stages of migration.

The objective of this Co-ordinated Research Programme is to improve the methods of controlling the aquatic environment by allowing them to benefit from the knowledge acquired and the research under way on the part played by sediments. The programme cannot be expected to cover the entire range of this considerable and complex field of research; it is designed rather to underscore its importance, to make research workers in developing countries more aware of the problems involved, and to facilitate their incorporation into the most highly competent research teams of the international scientific community. As a result of the research it should be possible to make proposals on the management of contaminated sediments and on the policy pursued in the matter of releases.

2.2. Review of topics to be taken into account for defining the programme
So that the fate of radioactive pollutants associated with sediment in the short, medium and long term can be traced, the research areas will deal with sediments which are dispersed, deposited and then consolidated

2.2.1. Study of the fate of radioactive pollutants in a dispersed diphasic medium

- (a) Physical and chemical form of radioactive pollutants penetrating into the aquatic system (liquid, silt, solid waste, ionic, molecular, colloidal and particulate forms, valence, pH, etc.);
- (b) Nature of physical and chemical interactions between radioactive pollutants, the liquid phase and the sedimentary phase. There will be special consideration of the role of humic matter (complex formation);
- (c) Type of bond between the pollutant and the supporting sediment: Van der Waals forces, covalent bonds, ion exchange, chemical precipitation, colloidal precipitation, etc. Study of reversibility and equilibrium. Chemical state of fixed compounds: oxidizing, reducing and exchangeable types and those bound to organic matter;
- (d) Influence of physico-chemical change on the redissolution of certain pollutants: part played by salinity in estuaries, effect of human intervention (extraction, opening and flushing of dams, etc.);
- (e) Influence of the mineralogical nature and size of particles.

2.2.2. Study of the transformation of radiopollutants on deposited and consolidated sediments: final fixation or redissolution.

- (a) Role of biological activity (phytoplankton and zooplankton, metabolism, etc.);
- (b) Role of the transformation of organic matter (fermentation, lysis, mineralization, etc.).

2.2.3. Identification of sedimentary critical pathways followed by radiopollutants that may take them as far as man

- (a) Identification of radionuclides having sediments as a support; their specification;
- (b) Role of the management of sediments: extraction, dredging, construction of installations, etc.;
- (c) Exploitation and destination of sediments;
- (d) etc.

2.2.4. Sampling and monitoring

- (a) Selection of sites that should be used for increased radiation monitoring by virtue of the risk of accumulation of polluted sediments;
- (b) Choice of sites where there should be sampling for purposes of analysis. Sampling frequency;
- (c) Sampling techniques and in situ measurements.

As far as possible, these studies will be made in situ or with freshly gathered and relatively untouched sediment samples, so as to bring out the differences, which may be considerable, between the results obtained in vivo and in situ.

LIST OF DOCUMENTS SUBMITTEDAT RCM 3A. IAEA CONTRACTORS

Contract 3318/RB (Chief Investigator : H. GOMEZ - Argentina)

GOMEZ H., MAGGIO G.E., HOPWOOD H.J.

Transfer of radioactive pollutants from water to sediments in the Rio Parana de Las Palmas and Rio de la Plata.

Contract 3319/RB (Chief Investigator : B. KISS - Hungary)

KISS B

Summary report

Contract 3333/RB (Chief Investigator : V. KOURIM - Czechoslovakia)

KOURIM V., DLOUHY Z.

The role of sediments as related to radionuclide movement in surface waters.

Contract 3334/RB (Chief Investigator : K.C. PILLAI - India)

DESAI M.V.M., KULKARNI V.V., DEY N.N., RAO S.R., BORKAR M.D., MORE A.K., SATHI KUMAR, CHHAPGAR B.F., PILLAI K.C.

Role of sediments in the distribution of Cs-137 in the Bombay Harbour Bay

Contract 3390/CF (Chief Investigator : Th. ZEEVAERT - Belgium)

ZEEVAERT Th., KIRCHMANN R., VANDECASTEELE C., KONINGS J.

Assessment of the doses to man from the sediments of a river receiving the radioactive effluents released by a waste treatment facility.

Contract 3391/CF (Chief Investigator : W. SALOMONS - Netherlands)

Micro-pollutants in sediment water systems.

Contract 3463/CF (Chief Investigator : Ph. PICAT - France)

PICAT Ph., QUINAULT J.M., THIRION J.P., SIGALA M.

The Role of sediments in radionuclide buildup and transport in waterways and estuaries.

PICAT Ph., BOURDEAU F., THIRION J.P., SIGALA M., QUINAULT J.M., ARNAUD M., CARTIER Y.

Study of the physico-chemical form of cobalt in the Loire River.

Contract 3611/RB (Chief Investigator : A.S. IBRAHIM - Egypt)

IBRAHIM A.S., ABDEL MALIK W.E.Y., AZIZ M., EL-SHINAWY R.M.K., KAMEL N.H.M.
Fate of radionuclides released into the aquatic ecology of Ismailia canal.

Contract 3935/RB (Chief Investigator : J. SEDLACEK - Czechoslovakia)

SEDLACEK J., BENES P., SEBESTA F.

Concentration and physico-chemical forms of radioactive contaminants in Dudvah river waters impacted by the effluents from nuclear power plants Jaslovske Bohunice, Czechoslovakia and model study of radiocobalt interaction with sediments.

B. ASSOCIATED PARTICIPANTS

R. BOGE - Sweden

BOGE R., JOHANSSON G., MOBERG L.

Radiation protection research initiated or planned by NIRP in the field of sediment.

K. HUBEL - Germany - Federal Republic

HUBEL K., LASCHKA D.

Sedimentation in River Basins

F. LASZLO - Hungary

LASZLO F.

The role of sediments in the transport of heavy metals in the Danube.

J. MOLINARI - France

LAUDELOUT H., SARDIN M., SCHWEICH D.

The mechanisms of solid-liquid interaction and their modelling.

SCHWEICH D., SARDIN M.

Methodology for determining distribution coefficients and alternative description of the sorption process.

D. WEIS - Germany - Democratic Republic

WEISS D.

Field studies on the distribution of some artificial radionuclides in different types of surface waters.

N.E. WHITEHEAD - Monaco

WHITEHEAD N.E.

Research at ILMR related to sediments in waterways.

G.S. TAZIOLI - Italy

TAZIOLI G.S.

On the application of nuclear gauges for measuring suspended sediment concentration in rivers. Some examples of application in Italy.

BRONDI M., FERRETTI O., CHIARA E., CRAGNANI R.

Trace elements and natural radionuclides distribution in waters, suspended matters and sediments, from Po river and during mixing with sea-water.

SAMENVATTING.

De hier beschreven studie werd uitgevoerd in het kader van het IAEA-onderzoek-programma : "Role of Sediments in Transport and Accumulation of Radionuclides in Waterways".

In deze studie werd de toepasbaarheid nagegaan van eenvoudige modellen voor het schatten van de dosis aan de mens ten gevolge van de besmetting van het bed-sediment van een rivier, de Neet, door lozingen van laag radioactief afvalwater, afkomstig van het SCK/CEN. Onder de gegeven omstandigheden is de uitwendige bestraling door het besmet sediment veruit de belangrijkste blootstellingsweg voor de mens. Voor het berekenen van de dosis ten gevolge van deze blootstellingsweg werden twee eenvoudige modellen toegepast : de "NRC Regulatory Guide 1.109" [1] en het "Schaeffer"-model [2], dit laatste in combinatie met de berekeningsmethode, voorgesteld door Hunt [3].

Het NRC-model werd aangepast aan de reële situatie door de duur van de expositie van het bedsediment aan het besmet water gelijk te stellen aan de duur van de radioactieve lozingen in de Neet.

De waarden van de sedimentatieconstanten, voorkomend in het Schaeffer-model, werden eksperimenteel bepaald.

De uiteindelijke validatie van de beide modellen volgde uit de vergelijking van de voorspelde (berekende) en de gemeten waarden van de uitwendige dosis-tempo's op de oevers van de Neet, ten gevolge van het besmet bedsediment.

RESUME.

L'étude présentée a été réalisée dans le cadre du programme de recherche de l'IAEA : "Role of Sediments in Transport and Accumulation of Radionuclides in Waterways". Le but de cette étude était de vérifier l'applicabilité de modèles simples pour l'estimation de la dose à l'homme par suite de la contamination du sédiment d'une rivière, la Neet, par des effluents faiblement radioactifs, provenant du CEN/SCK. Dans ce cas-ci, l'irradiation externe par le sédiment contaminé était de loin la voie d'exposition la plus importante de l'homme. La dose à l'homme, résultant de ce mode d'exposition, fut calculée suivant deux modèles simples : le "NRC Regulatory Guide 1.109 [1] et le modèle "Schaeffer" [2], ce dernier en combinaison avec la méthode de calcul proposée par Hunt [3].

Le modèle "NRC" fut adapté à la situation actuelle en ajustant la durée d'exposition du sédiment à l'eau contaminée.

Dans le modèle "Schaeffer", les constantes de sédimentation furent quantifiées de façon expérimentale.

La validation finale des deux modèles résultait de la comparaison des valeurs calculées et observées des vitesses de dose externe aux bords de la rivière, dues au sédiment contaminé.