

Contamination expérimentale de l'oranger par quelques radionucléides

J. DELMAS, A. GRAUBY, L. BLONDEL et R. GUENNELON*

CONTAMINATION EXPERIMENTALE DE L'ORANGER PAR QUELQUES RADIONUCLEIDES

J. DELMAS, A. GRAUBY, L. BLONDEL et R. GUENNELON
Fruits, avril 1974, vol. 29, n°4, p. 303-309.

RESUME - Le développement de l'industrie nucléaire, sous la forme de centrales électronucléaires, donne au processus de contamination des denrées agricoles par les radionucléides une certaine importance.

Des expériences ont été entreprises sur le terrain en Corse afin de préciser les relations entre le taux de contamination du milieu et celui des orangers dans l'hypothèse d'un apport de ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn par les eaux d'arrosage.

La contamination des plantes a été réalisée soit par des apports au sol d'eaux chargées de radionucléides, soit par pulvérisation sur les organes aériens des plantes.

Les observations portaient sur l'évolution des niveaux de contamination des plantes à différents stades du cycle végétatif.

On s'est particulièrement appliqué à définir les concentrations dans les produits consommés.

Les corrélations pouvant exister entre les radionucléides et les cations stables sont recherchées.

Des comparaisons entre les teneurs en radiopolluants des fruits sont faites en fonction des modes d'apport de l'eau contaminée.

INTRODUCTION

La plupart des installations nucléaires sont conçues et exploitées de manière à confiner les substances radioactives et les rayonnements dans l'enceinte de l'installation. Il n'en résulte pas moins une certaine pollution du milieu en raison, soit d'accidents, soit d'évacuation contrôlée d'effluents radioactifs de faible activité.

Les voies par lesquelles le rejet de produits radioactifs dans le milieu peut provoquer finalement une irradiation de l'homme dépendent de la nature du radionucléide, de son mode de rejet et des caractéristiques de l'environnement.

Le rejet en rivière de ces substances par des installations nucléaires, dont le nombre est appelé à croître de façon considérable, peut avoir pour effet la contamination des

cours d'eau destinés à l'irrigation des cultures et par voie de conséquence une contamination des parties comestibles des végétaux. Ceux-ci, en effet, concentrent dans leurs tissus les radiopolluants qui leur sont apportés par les eaux d'arrosage.

Par exemple les taux de transfert moyens du ^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{54}Mn de l'eau d'arrosage dans les légumes, à la suite d'apports répétés chaque année, sont compris entre 3,5 à 6,5. Il est voisin de 50 pour le ^{22}Na (1).

Ce risque et l'importance des agrumes sur les grands marchés de consommation ont entraîné le C.E.A., en liaison avec l'I.N.R.A., à entreprendre l'étude des modalités de transfert des produits de fission et d'activation dans l'oranger.

Par ailleurs certains caractères de l'oranger (feuilles persistantes) et la mise en oeuvre fréquente pour son irrigation d'aspersions qui mettent en contact direct les radiopolluants et les parties aériennes des plantes, pouvaient contribuer «a priori» à augmenter le risque de contamination du produit récolté.

* - DELMAS J. et GRAUBY A., Commissariat à l'Énergie atomique.
BLONDEL L. et GUENNELON R., Institut national de la Recherche agronomique.

Pour l'étude de ce problème, des expérimentations ont été entreprises sur une parcelle de l'orangerie de la station de recherches agronomiques de San Giuliano (INRA-IFAC). Depuis 1969, on a commencé ces travaux, des contaminations par voie aérienne et au sol ont été distribuées sur plusieurs orangers (2). Dans ce rapport sont présentées les observations portant sur le transfert du ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn .

ORGANISATION DE L'EXPÉRIENCE

L'orangerie expérimentale.

La parcelle expérimentale est constituée de 10 orangers de dix ans, plantés à 7 m x 7 m, de la variété Valencia late greffée sur bigaradier (*Citrus aurantium* L.).

Elle fait partie des 3.000 ha d'agrumes de Corse dont la plupart sont de plantation récente dans la principale zone d'extension située sur la côte orientale de l'île, entre Bastia et Solenzara.

Le climat de San Giuliano est typiquement méditerranéen : la température moyenne annuelle est 15°C , la pluviosité 810 mm.

Le sol est constitué d'alluvions anciennes plus ou moins gravement privées de calcaire (pH voisin de 6), pauvres en humus, en P_2O_5 et K_2O (tableau 1).

TABLEAU 1 - Caractéristiques du sol.

argile	0,002 mm	17
limon fin	0,002 à 0,02 mm	13
limon grossier	0,02 à 0,05 mm	10,7
sable fin	0,05 à 0,2 mm	35,1
sable grossier	0,2 à 2 mm	16,8
calcaire total (p. cent)		0
calcaire actif (p. cent)		0
pH eau		7
pH CIK		6,5
matières organiques		53
C		26,4
Capacité d'échange en mé/100 g		13,1

L'eau est de dureté moyenne et de minéralisation légère (tableau 2). Les fumures suivantes ont été appliquées en 1972 :

- 180 kg/h d'ammonitrate à 22 p. cent : 3 fois dans l'année,
- 500 kg/h de scories et
- 250 kg/ha de sulfate de potassium en octobre 1972.

TABLEAU 2 - Caractéristiques de l'eau.

pH	8,5
résistivité à 20°C	3.000
résidu sec à $105-110^{\circ}\text{C}$	189
calcium	50,3 mg/l

Le sol est maintenu sans mauvaises herbes par application d'herbicide de contact (diquat, paraquat).

Les arbres sont taillés annuellement par éclaircissage des rameaux. 7 arbres ont été choisis, un à l'extérieur de la parcelle, en tant que témoin, deux pour la contamination indirecte et 4 autres pour la contamination directe, parmi les 10 arbres du terrain d'expérience.

Contamination directe.

Sur chacun de ces quatre arbres, le feuillage d'une branche charpentière a été contaminé par pulvérisation au moyen d'un appareil Tecnomat n° 5, à pression constante. Les radionucléides étaient sous forme de chlorure sans entraîner en solution dans 200 cm^3 d'eau d'arrosage. Les opérations se sont déroulées en deux temps :

- 23 avril 1970 : $100\mu\text{Ci}$ de ^{90}Sr et $100\mu\text{Ci}$ de ^{137}Cs
- 1^{er} juin 1972 : $115\mu\text{Ci}$ de ^{60}Co et $130\mu\text{Ci}$ de ^{54}Mn .

Le reste du feuillage des quatre arbres a été recouvert d'un film de polyvinyle afin de le protéger de la pulvérisation.

Chaque arbre dans son entier a été mis sous abri plastique pendant l'exécution de la contamination. Le sol a été recouvert d'une bâche plastique pendant et après le traitement. Sur cette bâche une couche de terre, renouvelée fréquemment, a fixé les radionucléides entraînés par les pluies et arrosages.

Ce dispositif a empêché la contamination des arbres par voie racinaire.

Pendant la contamination le stade de floraison et les conditions climatiques sous la bâche étaient les suivantes :

radionucléides	^{90}Sr et ^{137}Cs	^{60}Co et ^{54}Mn
température	26°C	28°C
hygrométrie	50 %	30 %
fleurs épanouies	1/5	fruits noués 5/5
gros boutons blancs	2/5	
petits boutons verts	2/5	

Le feuillage était constitué de feuilles des années précédentes. Les rameaux correspondant à la poussée de sève du printemps de l'année en cours étaient nettement apparents dans les deux cas.

Respectivement, pour chaque contamination, les quantités de feuilles normalement développées ont été dénombrées comme suit :

^{90}Sr : 720 ; ^{137}Cs : 1680 ; ^{60}Co : 1190 ; ^{54}Mn : 2300.

Contamination indirecte.

Le 12 juin 1971, $928\mu\text{Ci}$ de ^{90}Sr , sous forme de chlorure en solution dans 10 litres d'eau de rivière ont été répartis au moyen d'un arrosoir, sur une superficie de 10 m^2 , au pied d'un arbre. Au préalable, une couche de 5 cm de sol environ avait été enlevée. Après contamination, cette couche de sol a été remise en place.

De la même façon, sur un autre arbre, $1096\mu\text{Ci}$ de ^{137}Cs , $1289\mu\text{Ci}$ de ^{54}Mn , $1495\mu\text{Ci}$ de ^{60}Co ont été apportés au pied d'un autre arbre. Ces radionucléides étaient

également sous forme de chlorure.

Prélèvement et traitement des échantillons.

A chaque prélèvement de feuilles on s'est efforcé de constituer des lots de 50 feuilles à partir :

- des feuilles de l'année précédente,
- des feuilles de la poussée de sève de printemps,
- des feuilles des poussées de sève de l'été et de l'automne.

Sur les branches contaminées par aspersion, des rubans de couleur ont été attachés sur les brindilles. Dans le cas de la contamination indirecte, lorsque les distinctions devenaient difficiles, deux lots seulement ont été constitués avec les feuilles des années précédentes et les feuilles de l'année en cours.

5 fruits minimum ont été cueillis à chaque époque de prélèvement. Les productions moyennes obtenues par arbre sont :

année	Poids (kg)	Nombre de fruits
1971	22,8	157
1972	21,9	104
1973	58,6	541

Les activités des feuilles et des fruits ont été comptées sur cendre. Les feuilles des arbres contaminés directement par le ^{90}Sr et le ^{137}Cs ont été comptées également une à une à l'état frais.

Des méthodes classiques ont été employées pour la préparation des échantillons et les analyses physico-chimiques.

L'activité du ^{90}Sr a été déterminée au moyen d'un compteur β total, type Renatran.

La détermination du ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn , a été exécutée au moyen d'un sélecteur d'amplitude 4.000 canaux, équipé d'un détecteur à jonction GeLi.

RÉSULTAT ET DISCUSSION

Contamination par le ^{90}Sr .

La moitié du ^{90}Sr déposé sur les feuilles soumises à l'aspersion est lessivée par les premières pluies et aspersions (tableau 3). Les quantités restées fixées sur les feuilles de l'année précédente et celles des poussées de sève de printemps restent ensuite constantes. Le ^{90}Sr ne migre donc pas vers les autres organes de l'arbre. La contamination par fruit, également constante dans le temps, résulte vraisemblablement du contact direct du ^{90}Sr avec les organes floraux au moment de la pulvérisation. Cette stabilité confirme l'absence de mobilité du ^{90}Sr à partir des surfaces contaminées. En fin de maturation du fruit sous l'effet de l'enrichissement en sucre, l'activité de la chair en particulier, baisse.

Le ^{90}Sr absorbé par voie racinaire s'accumule dans les parties aériennes de l'arbre (tableau 4).

La contamination des feuilles par ce radionucléide croît au cours de leur vieillissement. Ce phénomène est particulièrement frappant sur deux ans.

Le niveau d'activité des fruits est inférieur à celui des feuilles. Il est plus élevé au cours de la deuxième année. L'élévation générale du niveau de contamination de l'arbre est sans doute à l'origine de cette augmentation. Cette dernière devrait, normalement, s'élever dans les années à venir en raison notamment de la migration dans le sol en profondeur du radionucléide.

Le ^{90}Sr se comporte comme le Ca. En effet, les feuilles s'enrichissent en Ca en vieillissant (3). Dans les plantes le Ca, après s'être localisé, est virtuellement non mobile (tableau 5).

Contamination par le ^{137}Cs .

55 jours après la pulvérisation, un sixième du ^{137}Cs déposé sur les feuilles reste fixe sur celles-ci.

TABLEAU 3 - Quantité de ^{90}Sr fixé sur les feuilles et les fruits d'orangers contaminés expérimentalement par voie aérienne.

	4/70	6/70	9/70	1/71	4/71
Époque de prélèvement					
Nombre de jours écoulés depuis la contamination	0	55	152	264	342
Arrosage (mm)		100	140	135	
Pluviométrie (mm)		34,2	6,3	221,3	255,6
Feuilles des poussées					
pCi/g frais					
1969	20.340	11.500	11.280	11.060	11.260
printemps 1970		460	570	600	730
Fruits					
pCi par fruit			690	890	560
pCi/kg frais					
écorce			13.140	10.920	6.170
chair			1.860	2.030	700

TABLEAU 4 - Contamination des feuilles et des fruits d'orangers par le ^{90}Sr à partir du sol.

Époque de prélèvement	6/71	10/71	1/72	3/72	6/72	8/72	11/72	1/73	3/73
Feuilles des poussées de sève de									
pCi/g frais									
1970	25.600	29.800	59.770	85.830	82.344				
71/1	22.110	86.100	123.160	102.690	112.560				
71/2		79.700	125.800	119.711	178.460	285.440	475.450	480.085	463.800
71/3		72.600	128.970	100.130	197.950				
72/1					197.215	116.350	153.827	318.904	520.600
pCi/kg frais									
par fruit entier		1.620	2.280	2.100		380	1.330	2.370	5.430
écorce		28.110	25.670	24.300			13.900	47.020	39.400
chair		3.550	3.690	3.400			14.300	12.530	10.450

TABLEAU 5 - Caractéristiques de l'oranger mg/g sec.

Cations	23/4/70				17/6/70				22/9/70				12/9/70				1/4/71			
	K	Ca	Mg	Sr	K	Ca	Mg	Sr	K	Ca	Mg	Sr	K	Ca	Mg	Sr	K	Ca	Mg	Sr
Racines					5,1	29,3	1,13	0,0775	6,7	30,3	1,19	0,0805	5,05	43,5	1,48	0,204	3,75	1,4	0,66	0,035
Bois vert					5,1	29,3	1,13	0,0775	6,7	30,3	1,19	0,0805	5,05	43,5	1,48	0,204	7	43	1,69	0,157
Feuilles des poussées																				
de sève de 1969																				
printemps 1970	2,46	84,48	3,38	0,295	5,4	83,2	4,3	0,26	7,6	84,9	4,2	0,27	4	113	4,4	0,406	3,5	106	4	0,33
été-automne 1970									12,5	34,7	2,7	0,11	5,1	101	4,2	0,37	3,1	99	3,7	0,29
									19,5	58,4	3,8	0,19	9	55	2,8	0,25	3	74	3	0,22

Cette activité décroît ensuite de façon significative à partir de janvier alors que l'activité des nouvelles feuilles croît légèrement (tableau 6).

La contamination des fruits, résultant de la pulvérisation, croît en cours de maturation. La quantité de ^{137}Cs de ce radionucléide dans la chair du fruit augmente. On peut penser que cette augmentation est due au transfert du ^{137}Cs des feuilles aux fruits pendant cette période. Ce phénomène est tout à fait comparable au transfert du K des feuilles vers les fruits constaté par différents auteurs (4).

L'activité en ^{137}Cs des feuilles, après deux ans de contamination au sol, n'apparaît qu'à l'état de trace.

Contamination par le cobalt.

61 jours après la contamination, un quart du cobalt déposé n'a pas été encore entraîné par les arrosages et les pluies (tableau 7). Les variations ultérieures d'activité ne sont pas significatives. Les constituants du fruit présentent une activité relativement élevée dont les variations ne semblent pas significatives également. Cette contamination est due au contact des organes floraux au moment de la pulvérisation du ^{60}Co .

Il est possible que le stade végétatif particulier de cet organe à cet instant ait favorisé la contamination (fruits noués).

Par voie indirecte, la contamination des organes aériens reste faible.

Contamination par le ^{54}Mn .

Une très faible fraction de ^{54}Mn déposé sur les feuilles

n'a pas été entraînée par les arrosages et les pluies.

La contamination des écorces des fruits est très faible, celle de la chair nulle.

Aucune contamination significative des feuilles et des fruits, à partir du sol, n'a pu être déterminée (tableau 8).

CONCLUSION

La contamination de l'oranger par les radionucléides dépend entre autres de la nature et du mode d'apport du radiopolluant.

La pulvérisation des radiopolluants sur l'arbre à la floraison, stade particulièrement favorable à la contamination des fruits, contamine moins ceux-ci que les feuilles. Des fractions comprises entre 1/25 à 1/2 des quantités de radiopolluants déposés restent fixées sur les feuilles. Le ^{137}Cs migre vers les fruits. Les ^{54}Mn , ^{90}Sr , ^{60}Co ne sont pas mobiles à partir des feuilles contaminées par pulvérisation.

La contamination des fruits est très faible en ce qui concerne le ^{54}Mn , et faible pour le ^{90}Sr . Elle revêt une certaine importance pour le ^{137}Cs et le ^{60}Co .

Deux à trois ans après l'apport des radiopolluants au sol, les contaminations des fruits par voie racinaire en ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn n'apparaissent qu'à l'état de trace.

La contamination en ^{90}Sr est relativement élevée surtout en ce qui concerne les feuilles. Elle croît au cours de leur vieillissement.

La contamination des fruits, limitée au cours de la

TABLEAU 6 - Quantité de ^{137}Cs fixée sur les feuilles et les fruits d'orangers contaminés expérimentalement

par voie aérienne					
Époque de prélèvement	4/70	6/70	9/70	1/71	4/71
Nombre de jours écoulés depuis la contamination	0	55	152	264	342
Arrosage (mm)		100	140	135	
Pluviométrie (mm)		34,2	6,3	221,3	225,6
Feuilles des poussées de sève					
pCi/g frais					
1969	22.140	3.340	3.320	2.910	1.940
printemps 1970		640	890	1.010	1.000
et automne 1971					
pCi par fruit			1.330	1.770	2.490
pCi par kg frais					
écorce			36.140	20.400	11.310
chair			11.800	9.810	16.570
à partir du sol					
		72 et 73			
pCi/kg feuilles (valeur maxi)		450			
pCi/kg frais fruit (valeur maxi)		500			

TABLEAU 7 - Quantité de ^{60}Co fixée sur les feuilles et les fruits d'un oranger contaminé expérimentalement

par voie aérienne	6/72	8/72	11/72	1/73	3/73
Époque de prélèvement					
Nombre de jours écoulés depuis la contamination	0	61	176	239	294
Arrosage (mm)		150	100		
Pluviométrie (mm)		32,5	316,4	630	236,7
Feuilles des poussées de sève					
pCi/g frais					
1971	23.270	7.460	5.360	6.300	4.036
1972		3.440	1.400	1.220	1.216
pCi par fruit		8.500	10.530	11.400	14.887
pCi par kg frais					
écorce			135.700	131.540	152.412
chair			104.900	83.110	117.649
à partir du sol	1972 et 1973				
valeurs maxi					
pCi/kg feuilles	1.300				
pCi kg frais					
écorce	250				
chair	150				

TABLEAU 8 - Quantité de ^{54}Mn fixée sur les feuilles et les fruits d'un oranger contaminé expérimentalement

par voie aérienne	6/72	8/72	11/72	1/73	3/73
Époque de prélèvement					
Nombre de jours écoulés depuis la contamination	0	61	176	239	294
Arrosage (mm)		150	100		
Pluviométrie (mm)		32,5	316,4	630	236,7
Feuilles de poussées de sève					
pCi/g frais					
1971	25.400	1.070	730	1.000	670
1972		NS	70	110	100
Fruits					
pCi par fruit	-	-	-	-	-
pCi/kg frais					
écorce			20	40	20
chair			-	-	-
à partir du sol	1972 et 1973				
pCi/kg frais					
feuilles (valeur maxi)	580				
fruits	N D				

TABLEAU 9 - Transfert du ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn dans la chair des oranges par voies directe et indirecte.

	directe		indirecte	
	pCi/kg frais pCi déposés sur les feuilles	$\frac{\text{pCi/kg frais}}{\text{pCi au sol}}$ (10 m ²)		
		première récolte	deuxième récolte	
^{90}Sr	$0,08 \cdot 10^{-3}$	$0,003 \cdot 10^{-3}$	$0,01 \cdot 10^{-3}$	
^{137}Cs	$0,3 \cdot 10^{-3}$			
^{60}Co	$3 \cdot 10^{-3}$			
^{54}Mn	$< 0,01 \cdot 10^{-3}$			

première année, augmente considérablement la deuxième année.

Parmi les risques qui résultent de l'arrosage par aspersion des orangers par de l'eau polluée par le ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{90}Sr , le risque principal est dû dans un premier stade du ^{137}Cs et du ^{60}Co pulvérisés sur les parties aériennes de

l'arbre.

Le risque, résultant de l'absorption des radionucléides par voie racinaire, ne revêt une certaine importance que pour le ^{90}Sr , importance qui semble croître avec le temps puisque la deuxième année la contamination de la chair des fruits est triple de celle de l'année précédente.

BIBLIOGRAPHIE

1. DELMAS (J.), GRAUBY (A.), DISDIER (R.).
Etudes expérimentales sur le transfert dans les cultures de quelques radionucléides présents dans les effluents des centrales électronucléaires.
Congrès, Aix-en-Provence, France, AIEA/SM-172/61, 1973.
2. DELMAS (J.), BOVARD (P.), GRAUBY (A.), DISDIER (R.), BLONDEL (L.) et GUENNELON (R.).
Contamination directe de l'oranger.
Symposium international sur la Radioécologie appliquée à la protection de l'homme et de son environnement Rome 7-10 septembre 1971.
3. HOMER (J.) et CHAPMAN (D.).
The mineral nutrition of Citrus.
The Citrus Industry, 2, 1968, 132.
4. DEIDDO (P.) et VIRDES (M.).
Variazione di alcuni macroelementi nelle foglie e nei frutti di diverse specie di agrumi.
Istituto di Coltivazioni arboree dell'Università di Sassari ;
Annali della Facoltà di Agraria dell'Università di Sassari, 1969.

