BILAN CONSÉCUTIF A L'ADMINISTRATION CHRONIQUE A DES RUMINANTS DE RADIOCAESIUM PROVENANT DES RETOMBÉES

R. HANOUT, F. DABURON, J. DUCLOS *

(Manuscrit reçu le 19 juin 1972)

RÉSUMÉ

On a étudié le métabolisme du caesium 137 de retombées, chez la brebis et la vache. Deux brebis et une vache reçurent du foin contaminé, récolté deux ans auparavant. Une brebis reçut du caesium 137 de retombées, recueilli sur des filtres à air. Après discussion des principales causes d'erreur concernant ce type d'expériences, les résultats de la présente étude sont comparés aux données d'autres auteurs dont les conclusions sont confirmées. La différence entre les cinétiques d'excrétion classique et les études de contamination par retombées n'est pas due au métabolisme minéral des plantes fourragères.

ABSTRACT

The metabolism of fallout ^{137}Cs in the ewe and the cow is studied. Two ewes and one cow were fed with a two-year-old hay rather highly contaminated by fallout. After a discussion of the causes of error which can bias this type of experiences the results of the present study are compared with the data of other authors whose conclusions are confirmed. The difference between classical excretion, kinetics studies and fallout contamination studies is not caused by mineral metabolism of forage plants.

I - INTRODUCTION

Le métabolisme du radiocaesium a fait l'objet d'assez nombreuses études chez les ruminants. On comprend l'intérêt de ces études si on se rappelle la parenté chimique du caesium et du potassium, la présence de potassium dans les cellules animales et, par suite, l'importance éventuelle des denrées alimentaires d'origine animale comme source de radiocaesium pour l'homme. Cependant les données concernant ce radionucléide chez les ruminants sont plutôt disparates. Cette disparité découle essentiellement de conditions expérimentales différentes, notamment pour ce qui concerne l'état physico-chimique du radiocaesium utilisé : soit sous forme de traceur chimiquement défini, en solution [1, 2, 3, 4], soit sous sa forme « naturelle » tel qu'il existe dans les retombées consécutives aux

* Laboratoire de Radiobiologie Appliquée, Département de Protection, Commissariat à l'Energie Atomique, 78-Jouy-en-Josas, France.

essais nucléaires militaires [4, 5, 6, 7, 8, 9, 10]. Nous avons essayé de reproduire au laboratoire ces dernières conditions par administration chronique à des ruminants de radiocaesium provenant des retombées.

II - MATÉRIEL ET MÉTHODES

II - A. SCHÉMA EXPÉRIMENTAL

Les résultats que nous présentons ici proviennent de trois expériences.

II-A-1 — Nous avons conservé, pendant cent quarante jours, deux brebis en cage à métabolisme. Ces animaux ont été nourris pendant cent dix jours avec du foin de montagne contenant par kg environ 6 nCi de caesium 137 provenant des retombées (conférer Annexe) et [11]. Les animaux consommant une moyenne de 1,650 kg de foin par jour, la dose quotidienne de caesium 137 était de 10 nCi. En dehors de la période expérimentale, les animaux recevaient du foin de plaine contenant seulement des traces de ^{137}Cs , mais où les produits de fission frais ont un peu faussé les mesures. Les brebis ont été choisies parmi celles qui nous avaient servi à réaliser antérieurement des cinétiques de radiocaesium après administration unique [10-12].

II-A-2 — Le radiocaesium était présent dans le foin sous deux formes qui pouvaient être différentes : la forme « brute » des retombées déposées sur les feuilles et la forme éventuellement « transformée » par le métabolisme des végétaux après absorption. Afin de reconnaître la part revenant à ce métabolisme minéral sur le devenir du radiocaesium dans l'organisme animal, nous avons fait consommer à une brebis pendant trente-neuf jours, des filtres de papier provenant d'un réseau de surveillance de l'air *. La dose journalière fournie ainsi était en moyenne de 1 nCi de caesium 137, mais en fait, relativement variable d'un jour à l'autre. Une deuxième brebis servait de témoin, à cause de l'importance relative des produits de fission frais, présents dans l'alimentation à base de luzerne qui était fournie aux animaux, par rapport à la quantité de radiocaesium journalière; en particulier, le $^{95}(\text{Zr} + \text{Nb})$ et le ^{103}Rh sont très gênants sans un traitement radiochimique que nous n'avons pu réaliser **.

II-A-3 — Enfin, pour pouvoir évaluer l'importance de l'élimination dans le lait, nous avons nourri une vache pendant soixante-dix jours avec le foin de montagne précédemment décrit.

II - B. MESURES

Notre chaîne de mesure comprenait un détecteur à scintillation à cristal NaI (TI) de 102×102 et un analyseur multicanaux.

* Nous tenons ici à remercier M. BELOT (de la Section de Radio-écologie du Département) qui nous a fourni ces filtres.

** Marie-Louise DABURON - DPr - CEA - Communication personnelle.

Toutes nos mesures ont porté sur les excréments de vingt-quatre heures. L'activité dans l'alimentation était périodiquement contrôlée.

En ce qui concerne la mise en forme des échantillons, les faibles activités présentes nous ont obligé à les concentrer. Les fèces étaient incinérées à 500 °C pendant 24 heures, après étuvage prolongé à 110 °C. Les cendres obtenues étaient comprimées en une pastille de 50 mm de diamètre [13]. Le poids moyen de ces pastilles, contenant la totalité des excréta de 24 heures, était d'environ 70 g, dans le cas de la brebis. Dans le cas de la vache, une fraction aliquote des fèces était, après homogénéisation, recueillie de manière à obtenir le même poids de cendre. Pour l'urine, après divers essais, dont la dessiccation par ébullition prolongée, la concentration du radiocaesium contenu fut réalisée de la manière suivante : à la totalité du prélèvement acidifié par 10 % d'acide nitrique fumant, on ajoute 1/10 000 de phosphomolybdate d'ammonium [14-15]. Dans le cas des brebis nourries au foin, on laissait le complexe phospho-molybdate d'ammonium et de caesium se déposer au fond du pot cylindrique contenant l'échantillon : la géométrie était améliorée pour le caesium et il restait possible de mesurer le potassium par sa radioactivité naturelle *. Dans les autres expériences, le complexe phospho-molybdate d'ammonium-caesium était récupéré par filtration sur filtre « Whatman » en fibre de verre. On peut alors mesurer la radioactivité sur le filtre tel quel après séchage à l'étuve. Le lait, après écrémage, a subi le même traitement que l'urine (deuxième variante). La crème qui ne contenait d'ailleurs que des traces de radiocaesium, a été traitée comme les fèces.

III - RÉSULTATS

Il faut noter d'abord la bonne cohérence des résultats. Les courbes qui les illustrent sont pratiquement superposables qu'il s'agisse de brebis contaminées par du foin (fig. 1 et 2) ou ayant consommé des filtres de papier (fig. 3 et 3 bis). En ce qui concerne la vache (fig. 4), le rapport de la quantité de radioactivité contenue dans l'urine à celle des fèces est plus élevé que chez la brebis; notons, à ce propos que le foin n'avait pas exactement la même provenance dans les deux cas. Les résultats corroborent bien ceux d'autres auteurs et notamment ceux de TWARDOCK *et alii.* [4], JOHNSON *et alii.* [5], WEGENER - HAUSKEN et NYGGARD [7], WHIPPLE *et alii.* [8].

On remarque l'extrême ressemblance des courbes pour les deux séries de brebis, que le radiocaesium provienne du foin ou directement de l'air. En ce qui concerne la vache, la répartition de l'excrétion entre les voies urinaire, fécale et lactée est satisfaisante par rapport aux données de la littérature. Sa production laitière journalière était de quinze litres en moyenne, soit un coefficient de transfert de 0,4 % de la dose journalière par litre de lait. Ce chiffre est pratiquement identique à ceux fournis par JOHNSON *et alii.* [5], pour une vache également nourrie au foin.

La quantité globale de caesium, excrétée par une brebis chaque jour, se stabilise à une valeur moyenne constante deux semaines après le début de l'administration quotidienne.

* F. PATTI, DPr, CEA Communication personnelle.

La voie principale d'excrétion est la voie fécale par laquelle environ 90 % de la quantité administrée est éliminée; l'excrétion urinaire est environ de 8 % de la quantité ingérée.

Chez la vache, l'écart entre chaque voie d'excrétion est moindre : voie fécale 77 %, voie urinaire 15 %; l'élimination par le lait est de 6 % (soit 0,4 % par litre de lait).

En complément, et à titre d'essai, une des brebis a reçu 2 g de bleu de prusse chaque jour, pendant 10 jours, du 10 au 20 novembre (courbe 2) : ce traitement a entraîné une baisse de l'excrétion urinaire compensée par une légère augmentation de l'excrétion fécale.

IV - CAUSES D'ERREUR

La variabilité des mesures résulte de plusieurs causes dont les principales sont :

— La variabilité propre du système étudié; nous n'en voulons pour preuve que les variations journalières de l'excrétion du potassium par les brebis. La quantité de potassium excrété par une brebis dans les urines d'un jour varie de 0,7 à 4 g (moyenne 2,7) et, dans les fèces, de 0,6 à 2 g (moyenne 1,13); la quantité globale varie de 2,3 à 5,7 g (moyenne 3,9). Ces valeurs d'excrétion ont pu être contrôlées, au laboratoire, sur d'autres brebis, soit par mesure du potassium 40, soit par spectrométrie de flamme.

— Le potassium est un macroélément dont l'apport est pratiquement constant dans des conditions d'alimentation contrôlée. Or, nous l'avons vu, l'écart entre les excrétions peut atteindre un facteur 2. Mise en évidence pour le radiocaesium comme pour le potassium chez l'homme, par FUJITA *et alii*. [16], cette variabilité de l'excrétion journalière est sans doute le facteur le plus important dans la variabilité globale des mesures.

— Les conditions de prélèvement des échantillons. En effet, les excrétions étant discontinues, ce qui est recueilli comme excréta de vingt-quatre heures peut fort bien correspondre à une durée d'excrétion réelle un peu différente.

— Le traitement des échantillons. Ils sont traités en lots séparés; on doit donc s'attendre à une certaine fluctuation des rendements dans les traitements subis par les prélèvements, sans qu'il soit prudent de définir un écart probable. Avec un peu de soin, cette cause d'erreur peut être minimisée.

— Enfin, les conditions statiques du comptage qui sont défavorables, aux faibles niveaux de radioactivité avec lesquels nous avons travaillé.

Pour améliorer la précision de nos mesures, nous ne pouvions jouer que sur la précision de comptages. L'augmentation des temps de mesure, inéluctable, nous conduit alors à espacer nos prélèvements et, par là même, à négliger les autres causes d'erreur citées. Nous avons donc préféré multiplier les prélèvements et obtenir ainsi une appréciation expérimentale de l'erreur globale. Nous pensons, qu'ainsi les calculs, qui peuvent être faits sur un jeu de données expérimentales, sont beaucoup plus significatifs que si ces données étaient composées de points plus espacés mesurés avec plus de finesse. En effet, nous sommes désarmés devant la principale cause de fluctuation des mesures, à savoir la variabilité propre du système étudié.

V - DISCUSSION

Nous venons de voir que nos résultats corroboraient bien ceux de la littérature. Sur deux de nos brebis, nous avons fait une étude du devenir du caesium traceur soluble administré en une seule fois [10, 12] avant de les nourrir au foin contaminé. Les résultats sont discordants entre ces deux expériences. Chacune correspond aux données fournies dans les mêmes conditions par d'autres auteurs [3, 4] qui ont mis le même phénomène en évidence. Il ne se produit que chez les ruminants.

Des comparaisons de même nature, faites chez l'homme, ne montrent pas de différence entre le métabolisme du caesium en traceur ou inclus dans la nourriture [17, 18, 19, 20].

Cette discordance étant propre aux ruminants, on est évidemment tenté de la rapprocher d'autres particularités de ces espèces, à savoir les caractéristiques anatomiques et physiologiques de leur tube digestif. On a remarqué également [4, 5] l'influence importante du taux d'indigestible de la ration sur la répartition de l'excrétion entre les différentes voies. Ce fait a d'ailleurs pu être mis en évidence dans d'autres espèces [21].

Nos résultats montrent que le métabolisme minéral des végétaux n'intervient pas dans le transfert du radiocaesium à l'organisme animal : les courbes d'excrétion de l'expérience « brebis-filtres » et de l'expérience « brebis-foin » sont pratiquement superposables. Les différences annexes entre nos deux expériences : alimentation (luzerne et foin de montagne), conditions de mesure (activité très faible en présence d'impuretés) nous interdisent une analyse fine des résultats comparés. Elles ne peuvent cependant pas cacher la bonne cohérence de nos résultats.

VI - CONCLUSIONS

Cette étude apporte des résultats qui permettent de confirmer ceux obtenus par certains auteurs, en ce qui concerne les bilans d'excrétion du radiocaesium ingéré par les ruminants, à savoir :

- La discordance entre les résultats obtenus, d'une part, avec du foin contaminé par les retombées, et, d'autre part, avec du caesium soluble chimiquement défini.

- L'importance relative de l'excrétion fécale chez les animaux sur ration à base de fourrage, surtout lorsque le caesium administré provient des retombées réelles. L'excrétion urinaire est d'environ dix fois moindre (brebis).

- L'écart moindre, chez la vache, entre ces deux modes d'élimination qui ne diffèrent que d'un facteur 5.

- La quantité globale excrétée par le lait correspond chez la vache à la moitié de celle éliminée par les urines et au treizième de celle éliminée par les fèces : un litre de lait d'une vache sur ration de foin contient environ 0,4 % de la quantité journalière de caesium ingéré.

ANNEXE : PROVENANCE DU FOIN

Nous avons recherché ce foin en nous basant sur les résultats de la thèse de MURY [11] qui indiquait que certaines carcasses de bovins provenant de la région de Clermont-Ferrand contenaient des quantités relativement considérables de radiocaesium. Après une discussion avec M. GACHON de la station I.N.R.A. de Clermont-Ferrand, une prospection fut menée, grâce à la bonne volonté des éleveurs de la région, sur les terrains d'origine basaltique (donc exempts d'argile), d'altitude supérieure à 1 000 m, à forte pluviométrie, couverts de prairies permanentes, du pourtour des Monts-Dore et Cézallier. La contamination du foin recueilli variait de 360 pCi/kg dans la zone sud-est, à 9 800 pCi/kg sur les plateaux élevés (1 400 m) au pied ouest du Sancy, soit 26 à 730 pCi de caesium par gramme de potassium. Il fut possible d'acquérir une quantité suffisante de foin, contenant 6 nCi/kg dans les domaines I.N.R.A. de LAQUEUILLE et d'ORCIVAL. Notons que toute la période de fenaison fut sans pluie cette année-là (1967). Toutefois, ces prairies permanentes sont fumées; il y a donc un probable recyclage du Cs excrété par les animaux. Le foin récolté deux ans auparavant ne contenait pas d'autre émetteur gamma artificiel détectable.

Nous tenons à remercier ici M. GACHON, Directeur du Centre de Recherches Agronomiques de Clermont-Ferrand, M. BROCHARD, Directeur du C.R.V.Z. de Theix, MM. les Directeurs des domaines de l'I.N.R.A. de LAQUEUILLE ORCIVAL et MERCENAT et MM. les Éleveurs qui nous ont permis de mener à bien cette prospection.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] HOOD S.L., COMAR C.L. Metabolism of Cesium-137 in rat and farm animals. *Arch. Biochem. Biophys.*, 1953, **45**, 423-433.
- [2] SANSOM B.F. The metabolism of cesium-137 in dairy cows. *J. Agric. Sci.*, 1966, **66**, 389-393.
- [3] TWARDOCK A.R., CRACKEL W.C. Cesium-137 retention by cattle, sheep and swine. *Health Physics*, 1969, **16**, 315-323.
- [4] TWARDOCK A.R. et coll. A study of fission products levels and metabolism in food producing animal as determined by whole body counting. COO - 1339-3 et COO - 1339-4, 1966.
- [5] JOHNSON J.E., WARD G.M., FIRESTONE E., KNOX K.L. Metabolism of radioactive cesium (134 Cs and 137 Cs) and potassium by dairy cattle as influenced by high and low forage diets. *J. Nutr.*, 1968, 282-288.
- [6] ROESSLER C.E., DUNAVANT H.G., BEVIS H.A. Investigations of unusual cesium ecology in Florida : 137-Cs levels in feed-lot beef. *Health physics*, 1969, **16**, 691-700.
- [7] WEGENER-HAUSKEN O., NYGGARD J.J. Uptake and excretion of 137-Cs, K, and 95-Zr-Nb in cattle. *Act. Vet. Scand.*, 1964, **5**, 331-346.
- [8] WHIPPLE G.H., PELLETIER C.A., WEDLICK H.L. Investigation into the cycling and recycling of certain radionuclides into the food chain. COO - 133-3, 1966.
- [9] HANOUT R. Le métabolisme du césium chez les ruminants et chez l'homme, ses rapports avec le métabolisme du potassium. *Revue du Corps des Vétérinaires Biologistes des Armées*, 1968, **21**, 52-63, et 115-119.
- [10] CARNAUD C. Contribution à l'étude du métabolisme du césium chez les ovins (essai d'un traitement mathématique de données expérimentales). Thèse doctorat-vétérinaire, Paris, 1969.

- [11] MURY J. Contribution à l'étude de la radiocontamination des bovins par le césium-137. Thèse Doctorat-Vétérinaire, Lyon, 1968.
- [12] HANOIT R., CARNAUD C., REMY J. Un traitement mathématique de la cinétique du radio-césium chez la brebis. *Health Physics*, 1971, **20**, 601-611.
- [13] LEGEAY G. Méthode rapide de mesure de l'activité globale d'un échantillon de produit alimentaire. *Bull. Acad. Vét. France*, 1961.
- [14] DERECKI J., GEISLER J., JANKOVIC D., JAWOROSKI Z. A rapid method for the determination of cesium-137 in water and urine. *Nukleonika*, 1963, **8**, 69-74.
- [15] SCHEIDAUER J., CHABIDON M., ORDINAIRE L. Contribution à l'utilisation analytique du phosphomolybdate d'ammonium : séparation du radiocésium en solution. Rapport : C.E.A. - R - 2430, 1964.
- [16] FUJITA M., IWAMOTO J., KONDO M., YABE A. Day to day variation of dietary intake and urinary excretion of fallout ^{137}Cs and stable K in man. *Health Physics*, 1969, **16**, 185-196.
- [17] JEANMAIRE L. Note au sujet de deux types de contamination humaine par le ^{137}Cs . Assessment of radioactivity in man, Heidelberg, 11-16 May 1964, Vol. 2, 75-78. A.I.E.A., Vienne, 1964.
- [18] MCCRAW T.F. The half-time of ^{137}Cs in man. *Radiol. Health data*, 1965, **6**, 711-718.
- [19] FUJITA M., YABE A., AKAISHI J., OHTANI S. Relationship between ingestion, excretion and accumulation of fallout ^{137}Cs in man on a long-term scale. *Health Physics*, 1966, **12**, 1649-1653.
- [20] HARDY E.P., RIVERA J., CONARD R.A. Cesium-137 and Strontium-90 retention following an acute ingestion of Rongelap food. *Conf. 765*, 1965, 743-7557.
- [21] WILLIAMS L.G., PATRICK H. Metabolism of Cs-^{137} in rabbits. *Arch. Biochem. Biophys.*, 1957, **70**, 464.

FIG. 1. — Excrétion journalière du ^{137}Cs de la brebis. N° 7 017 par les urines et les fèces.

FIG. 2. — Excrétion journalière du ^{137}Cs de la brebis. N° 7018 par les urines et les fèces. (On remarque que le Bleu de Prusse diminue l'excrétion urinaire et augmente l'excrétion fécale).

FIG. 3. — Excrétion journalière du ^{137}Cs dans les fèces de la brebis « Filtres ». FIG. 3 bis. — Excrétion journalière du ^{137}Cs dans l'urine de la brebis « Filtres ».

FIG. 4. — Excrétion journalière du ^{137}Cs par la vache.