

Analyse, inform and activate

LAKA

Analyseren, informeren, en activeren

Stichting Laka: Documentatie- en onderzoekscentrum kernenergie

De Laka-bibliotheek

Dit is een pdf van één van de publicaties in de bibliotheek van Stichting Laka, het in Amsterdam gevestigde documentatie- en onderzoekscentrum kernenergie.

Laka heeft een bibliotheek met ongeveer 8000 boeken (waarvan een gedeelte dus ook als pdf), duizenden kranten- en tijdschriften-artikelen, honderden tijdschriftentitels, posters, video's en ander beeldmateriaal. Laka digitaliseert (oude) tijdschriften en boeken uit de internationale antikernenergie-beweging.

De [catalogus](#) van de Laka-bibliotheek staat op onze site. De collectie bevat een grote verzameling gedigitaliseerde [tijdschriften](#) uit de Nederlandse antikernenergie-beweging en een verzameling [video's](#).

Laka speelt met oa. haar informatie-voorziening een belangrijke rol in de Nederlandse anti-kernenergiebeweging.

The Laka-library

This is a PDF from one of the publications from the library of the Laka Foundation; the Amsterdam-based documentation and research centre on nuclear energy.

The Laka library consists of about 8,000 books (of which a part is available as PDF), thousands of newspaper clippings, hundreds of magazines, posters, video's and other material. Laka digitizes books and magazines from the international movement against nuclear power.

The [catalogue](#) of the Laka-library can be found at our website. The collection also contains a large number of digitized [magazines](#) from the Dutch anti-nuclear power movement and a [video-section](#).

Laka plays with, amongst others things, its information services, an important role in the Dutch anti-nuclear movement.

Appreciate our work? Feel free to make a small [donation](#). Thank you.



www.laka.org | info@laka.org | Ketelhuisplein 43, 1054 RD Amsterdam | 020-6168294

Livre blanc du tritium

Éditorial

Position et plan d'action de l'ASN

Synthèses et recommandations

Synthèse et recommandations des groupes de réflexion "impact du tritium" et "défense en profondeur"

État des connaissances

Inventaire des sources de tritium et synthèse bibliographique

- Sources de production et gestion du tritium produit par les installations nucléaires (IRSN)
- Le tritium dans l'environnement (IRSN)

Origine du tritium, modes de gestion, techniques de piégeages, réduction à la source

- Rejets de tritium des CNPE d'EDF (EDF)
- Le Deutérium et le Tritium : le combustible d'ITER (ITER)
- Le tritium dans les déchets des réacteurs d'EDF en cours de démantèlement (EDF)
- Le tritium issu des activités de recyclage de combustibles usés d'AREVA NC La Hague (AREVA)
- Les systèmes de détritiation d'ITER (ITER)
- Retour d'expérience du procédé de détritiation de Valduc (CEA)
- Retour d'expérience sur la gestion des déchets et rejets tritiés (CEA)
- Entreposage des déchets tritiés sans exutoire de filière (CEA)
- Le stockage de déchets radioactifs contenant du tritium : impact des rejets sur l'environnement (ANDRA)

Métrologie du tritium : cas du tritium organiquement lié (TOL)

Impact sur l'environnement

- Le tritium et les êtres vivants (ANCCLI)
- Rejets marins de tritium (ACRO)
- Le procédé mis en oeuvre sur l'usine AREVA NC de La Hague pour le traitement des combustibles usés conduit à un rejet de tritium libre (AREVA)
- Gestion des rejets de tritium du site AREVA NC de La Hague, impact et surveillance associés (AREVA)
- Étude du transfert du tritium aux végétaux (CEA)
- Connaissance des transferts de l'eau tritiée atmosphérique dans les différents compartiments de l'environnement (CEA)
- Apports de la modélisation sur la compréhension des transferts du tritium dans la biosphère et conséquences pratiques en cas de rejet accidentel (CEA)

- Tritium et convention OSPAR (IRSN)
- Point de vue de l'IRSN sur les questions clés et sur les pistes de recherche et de développement (IRSN)

Impact sur l'homme

- Effets du tritium in utero (CEA)
- TOL et noyau de la cellule : un problème encore négligé ? (W.U. Müller)
- Les effets biologiques et sanitaires du tritium : questions d'actualité (ANCCLI)
- Eléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium (IRSN)
- Tritium : limites de rejets et impact (IRSN)
- Le Tritium : un risque sous-estimé (ACRO)
- L'ANCCLI et le tritium (ANCCLI)

Sommaire

2	Editorial (Directeur général ASN)
4	Position de L'ASN (Collège ASN)
6	Groupes de réflexion Tritium : synthèse des travaux et recommandations (Dr. P. Smeesters, R. Masse)
13	Chapitre 1 – Inventaire des sources de tritium et synthèse bibliographique
111	Chapitre 2 - Origine du tritium, modes de gestion, techniques de piégeages, réduction à la source
173	Chapitre 3 - Métrologie
185	Chapitre 4 – Impact sur l'Environnement
241	Chapitre 5 – Impact sur l'homme
274	Annexes
278	Index

Fin 2007, des publications ont suscité des interrogations sur le comportement du tritium dans l'environnement et sur les modalités d'évaluation de l'impact biologique du tritium sur l'homme. Deux rapports en particulier ont appelé l'attention des pouvoirs publics et des associations :

- le rapport RIFE 11 (Radioactivity In Food and the Environment) des agences environnementales et sanitaires britanniques, qui met en évidence des concentrations de tritium sous forme organique dans des organismes marins au voisinage de Sellafield supérieures aux teneurs en tritium de l'eau de mer. Cela est en effet susceptible de remettre en question les hypothèses appliquées dans les calculs d'impact radiologique sur la population, qui considèrent que le tritium est un radionucléide qui, sous forme d'eau tritiée, ne présente pas de tendance à l'accumulation dans les composés environnementaux et biologiques ;
- le rapport britannique AGIR de l'Health Protection Agency de novembre 2007, qui prend position pour une réévaluation du facteur de pondération du tritium dans le calcul des doses efficaces.

Dans le même temps, l'ASN a constaté le développement de projets de nouvelles installations (EPR, ITER) et l'évolution des modes de gestion des combustibles nucléaires, qui conduisent tous deux à une augmentation des rejets en tritium de l'industrie nucléaire.

Dans ce contexte, j'ai souhaité disposer d'une analyse approfondie des connaissances existantes sur le sujet et ai décidé au début de l'année 2008 de créer deux groupes de réflexion pluralistes :

- un groupe avec la mission de traiter les questions relatives à la possible bioaccumulation du tritium dans les différents compartiments biologiques et à l'évaluation des effets sur la santé du rayonnement du tritium, présidé par Dr. Patrick Smeesters de l'Agence Fédérale de Contrôle Nucléaire belge ;
- un groupe chargé d'examiner l'impact des nouvelles installations, les possibilités de réduction à la source du tritium, les possibilités de détritiation et de gestion des déchets tritiés, présidé par M. Roland Masse de l'Académie des technologies.

Les groupes ont été constitués d'experts (CEA, CNRS, GSIEN, Institut Curie, IRSN, universités, experts « article 31 » auprès de la Commission européenne), de représentants des exploitants (ANDRA, AREVA, CEA, EDF, ITER), des CLI et de l'ANCCLI et d'association (ACRO), et des autorités de sûreté (ASN, DSND).

Le présent *Livre blanc* présente la synthèse des travaux menés par les deux groupes de travail de mai 2008 à avril 2010. Il comprend :

- la position de l'ASN et les actions qu'elle engage, issues de la synthèse des travaux des groupes et de leurs recommandations ;
- la synthèse des travaux et les constats et recommandations des deux groupes de réflexion par leurs présidents ;
- les contributions écrites des différents participants aux groupes de réflexion : ces contributions correspondent aux présentations effectuées au cours des travaux ; elles ont été rédigées sous la seule responsabilité de leur(s) auteur(s).

Il me semble important de souligner la capacité des participants, d'horizons différents, à échanger dans le cadre d'une démarche pluraliste sur un sujet technique complexe ayant trait à la protection des populations et de l'environnement.

L'ampleur et la qualité du travail réalisé et l'esprit constructif qui a animé les débats, sous la responsabilité bienveillante et efficace des présidents des deux groupes, ont permis d'aboutir à ce travail partagé où les différents point de vue ont pu s'exprimer.



Le Directeur général de
l'Autorité de sûreté nucléaire
Jean-Christophe NIEL

Collège de l'ASN

Le tritium est un isotope de l'hydrogène, émetteur bêta de faible énergie (énergie moyenne de 5,7 keV). La forme majoritaire dans la biosphère est l'eau tritiée et la voie prépondérante d'exposition est l'ingestion. C'est un élément de faible radiotoxicité. L'impact global de ses rejets, en France, est faible ; la dose efficace annuelle pour les groupes de référence est inférieure au ou de l'ordre du μSv .

Les rejets radioactifs dans l'environnement des installations nucléaires civiles ont fortement diminué au cours des dernières décennies, à l'exception du tritium, dont les perspectives sont à la hausse en raison de l'évolution envisagée du parc électronucléaire et de ses modes de gestion du combustible, ainsi que de nouvelles installations émettrices de tritium, dont la construction de nouveaux réacteurs électrogènes et le projet ITER.

Fin 2007, des publications britanniques (rapport RIFE 11, étude du groupe AGIR (HPA)) ont suscité des interrogations sur le comportement du tritium dans l'environnement, notamment sur une éventuelle accumulation dans l'organisme de tritium organiquement lié à partir du tritium libéré dans l'environnement et sur les modalités d'évaluation de l'impact biologique du tritium sur l'homme.

Dans ce contexte, la Direction de l'ASN a souhaité disposer d'une analyse précise des études existantes sur le sujet et a décidé début 2008 de créer deux groupes de réflexion pluralistes présidés par Dr Patrick Smeesters de l'Agence Fédérale de Contrôle Nucléaire belge, et M. Roland Masse de l'Académie des technologies. Les groupes ont été constitués d'experts (CEA, CNRS, GSIEN, Institut Curie, IRSN, universités, experts « article 31 » auprès de la Commission européenne), de représentants des exploitants (ANDRA, AREVA, CEA, EDF, ITER), des associations (ANCCLI, ACRO, CLI), et des Autorités de sûreté (ASN, DSND). Ils ont remis leurs conclusions et recommandations début avril 2010.

L'ASN se félicite de la qualité des travaux menés, et de l'importante bibliographie associée, qui ont conduit aux recommandations formulées à la fin de la synthèse de chaque groupe.

Ces travaux rappellent le faible impact des rejets de tritium en France. Mais ils mettent aussi en évidence la nécessité de mener des études et recherches complémentaires pour conforter les données et connaissances actuelles sur le comportement du tritium dans l'environnement.

Sur la base des recommandations proposées par les deux groupes de réflexion, l'ASN propose le plan d'action suivant. Elle souhaite également que les organismes de recherche intègrent les demandes exprimées par les groupes de réflexion, qui sont rappelées ci-après.

1 | Plan d'action de l'ASN

1|1 | Métrologie

Il n'existe pas actuellement de protocole de mesure normalisé des différentes formes physico-chimiques du tritium et en particulier des différentes formes organiques du tritium (échangeable et non-échangeable). L'absence de méthode normalisée rend ainsi difficile l'interprétation des études et données existantes. La commission d'établissement des méthodes d'analyse du CEA a engagé des travaux pour établir des protocoles de mesures partagés et reconnus. L'ASN considère que ces travaux :

- doivent aboutir à l'élaboration d'un guide sur la mesure du tritium organiquement lié ;
- constituent un préalable indispensable à la mise en œuvre d'études complémentaires.

1|2 | Maîtrise des rejets

Il est actuellement considéré que la détritiation des rejets des réacteurs électrogènes et de l'usine de traitement du combustible irradié de La Hague n'est pas réalisable à un coût acceptable avec les meilleures techniques actuellement disponibles. Elle n'aurait de plus qu'un effet limité sur l'impact radiologique de ces installations.

Devant l'augmentation observée des rejets de tritium des installations nucléaires civiles, en l'absence de méthode de détritiation et au titre du développement de la défense en profondeur, l'ASN considère que :

- la publication annuelle pour chaque installation des quantités rejetées assure la pérennisation de l'inventaire des sources de production de tritium. Cet inventaire des rejets de tritium doit faire l'objet, de la part des exploitants, d'une information régulière et spécifique du public ;
- la comptabilisation des rejets effectués dans l'ensemble des installations doit rester maîtrisée en toutes circonstances, comme elle l'est aujourd'hui ;
- une veille technologique dans le domaine de la détritiation doit être mise en place.

1|3| Surveillance de l'environnement

La surveillance du tritium dans l'environnement et le long de la chaîne alimentaire doit être complétée :

- les mesures à réaliser doivent tenir compte des formes physico-chimiques présentes. En conséquence, l'ASN demandera aux exploitants d'approfondir la caractérisation des formes physico-chimiques du tritium dans les rejets, en particulier en ce qui concerne l'existence possible de précurseurs organiques (petites molécules organiques tritiées) ;
- les plans d'échantillonnages dans les différents compartiments environnementaux doivent être incontestés et partagés. En particulier, le choix des espèces animales et végétales à mesurer doit être revu afin de lever tout biais d'espèce.

1|4| Estimation de l'impact

Certaines études évoquent une possible sous-estimation de l'efficacité biologique relative du rayonnement du tritium. L'ASN demandera à la CIPR de réexaminer la valeur du facteur de pondération (w_R) du tritium dans le calcul des doses efficaces. Sans attendre la réponse de la CIPR, l'ASN demandera aux exploitants que les études d'impact radiologique de leur projets soient accompagnées d'une étude critique comportant une variante prenant en compte un facteur de pondération (w_R) du tritium égal à deux.

2| Thèmes de recherche

Les connaissances actuelles sur les effets biologiques du tritium sont sur certains points parcelaires. Afin de répondre à l'ensemble des interrogations, les thèmes suivants doivent être approfondis par les organismes de recherche :

- Harmonisation des méthodes d'évaluation des doses en fonction de la forme physico-chimique du tritium, de la voie de contamination et de la durée d'exposition ;
- Etudes sur les effets de l'exposition de l'embryon et du fœtus au tritium ;
- Investigation de nouvelles approches sur l'induction potentielle d'effets héréditaires.

Ces travaux nécessitent pour la plupart des coopérations au niveau international.

Enfin, l'ASN estime que l'ensemble des parties prenantes doit poursuivre la réflexion et propose la création d'un comité de suivi chargé de suivre les actions engagées à la suite des recommandations des groupes de réflexion.

Groupes de réflexion tritium

Synthèse des travaux et recommandations

Dr Patrick Smeesters AFCN, président du groupe « impact du tritium »
M. Roland Masse, AT, président du groupe « tritium :
défense en profondeur »

1 | Introduction aux synthèses des travaux et recommandations des groupes de réflexion

1|1 | Objectifs et approche

L'Autorité de sûreté nucléaire a souhaité en 2008 la création de deux groupes de réflexion chargés d'établir un état des lieux des connaissances scientifiques relatives à l'impact environnemental et sanitaire (groupe « impact du tritium ») et un état des lieux des sources et de l'impact du tritium (groupe « tritium : défense en profondeur ») et d'élaborer, si nécessaire, des recommandations.

D'emblée il convient de souligner la volonté de pluralisme qui a sous-tendu la constitution de ces groupes. Ceux-ci reprennent en effet largement les parties prenantes françaises, tant du côté des autorités, des organismes d'expertises, de recherche et des opérateurs que de celui de la société civile. Chacun a eu la possibilité de s'exprimer, dans le cadre d'une présentation et au travers des débats, et de produire un texte écrit qui est repris in extenso dans le présent livre blanc. Ces textes écrits n'engagent que leurs auteurs. Les synthèses ci-après résument les principaux points abordés en présentant les différents points de vue, précisent le cas échéant s'ils font l'objet de désaccord et s'achèvent par une série de recommandations du groupe de réflexion.

En particulier, les groupes ont reçu pour mission d'explorer les thèmes :

- pour le groupe « impact », d'une possible accumulation du tritium le long de la chaîne alimentaire et d'une éventuelle réévaluation des effets sur la santé du rayonnement bêta du tritium.
- pour le groupe « défense en profondeur », des conséquences de l'augmentation future des rejets en tritium, et des solutions industrielles pour la séparation et la séquestration du tritium à partir des rejets liquides ou gazeux.

1|2 | Le tritium

Le tritium (^3H) est un isotope radioactif de l'hydrogène, son activité massique est de 358 TBq.g⁻¹. A l'état naturel, ^3H est en proportion infime : on compte de l'ordre de 1 atome de tritium pour 10¹⁸ atomes d'hydrogène. Chaque année, environ 70 000 TBq (0,2 kg) de tritium sont produits par interaction des rayonnements cosmiques avec différents constituants atmosphériques. La période radioactive du tritium est de 12,3 ans, l'inventaire global du tritium naturel est évalué à 1300 PBq¹ (3,5 kg).

Le tritium existe sous différentes formes chimiques : eau tritiée (HTO), tritium gazeux (HT) et tritium lié à la matière organique (TOL).

Emetteur bêta de faible énergie (énergie moyenne de 5,7 keV), le tritium est généralement considéré comme un élément de faible radiotoxicité. Il suit le cycle de l'hydrogène, dans lequel il se dilue. La forme prépondérante dans la biosphère est l'eau tritiée, dont la période biologique par ingestion est estimée à 10 jours pour un adulte. La voie prépondérante d'exposition au tritium est l'ingestion. Une dose annuelle d'environ 0,01 µSv est due à l'exposition au ^3H d'origine naturelle.

2 | Synthèse des travaux et recommandations du groupe de réflexion « Impact du tritium »

2|1 | Bref rappel du contexte de ces travaux

Le tritium est d'origine naturelle ou anthropogénique. Il est produit sous forme d'hydrogène tritié, d'eau tritiée ou de molécules organiques tritiées. Sous l'effet du processus d'oxydation, le tritium gazeux se transforme en eau tritiée et rejoint ainsi le cycle de l'eau. L'hydrogène étant un constituant majeur de la matière vivante (avec le carbone, l'oxygène et l'azote), le tritium peut devenir un constituant de molécules organiques cellulaires à l'occasion de processus tels que la photosynthèse ou, chez l'animal, la biosynthèse des molécules constitutives des cellules, ou encore par des échanges d'hydrogène avec le milieu ambiant. Les différences de forces de liaison avec la matière organique conduisent à définir deux sous-fractions de tritium organiquement lié (TOL): le TOL échangeable (avec l'hydrogène de l'eau cellulaire) et le TOL non-échangeable (en pratique le tritium lié au carbone). Les processus d'échange peuvent être ralentis voire bloqués après la mort des organismes, permettant une certaine rémanence des molécules organiques dans les sols ou les sédiments. Emetteur bêta de faible énergie, le tritium est généralement considéré comme un élément de faible radiotoxicité. Le tritium ingéré sous forme organique via le bol alimentaire normal est environ trois fois plus radiotoxique que l'eau tritiée (le coefficient de dose par unité d'activité ingérée est environ trois fois plus élevé). Ceci est lié aux différences dans la période d'élimination biologique.

Depuis quelques années, le tritium est revenu à l'ordre du jour. D'une part, des concentrations élevées de formes organiques de tritium ont en effet été observées de façon inattendue chez certaines espèces marines (poissons plats, crustacés, mollusques) de la baie de Cardiff, zone dans laquelle il y a eu des rejets industriels de molécules biologiques marquées au tritium. Des observations analogues mais moins marquées ont par ailleurs été faites au large de Sellafield, zone où les rejets industriels sont théoriquement limités à de l'eau tritiée. Ces observations posent la question d'une possible accumulation du tritium le long de la chaîne alimentaire marine. D'autre part, sur le plan sanitaire, des synthèses

¹ Les principaux multiples utilisés : 10³ kilo k ; 10⁶ mega M ; 10⁹ giga G ; 10¹² téra T ; 10¹⁵ péta P ; 10¹⁸ exa E

récentes (AGIR², Article 31³) ont souligné plusieurs difficultés et/ou incertitudes concernant l'évaluation des effets de l'exposition au tritium : les conséquences de la distribution très hétérogène de la dose délivrée par le tritium, particulièrement lorsque celui-ci est incorporé dans l'ADN ou les histones, les incertitudes associées aux facteurs de qualité et EBR (efficacité biologique relative), la valeur du facteur de pondération w_R pour le tritium (une augmentation d'un facteur 2 a été proposée), le manque de données sur les effets d'expositions chroniques ou encore la dispersion des résultats quand il s'agit de molécules organiques tritiées, variant fortement suivant le type de molécule et l'effet biologique analysé.

C'est pour faire le point sur toutes ces questions que l'ASN a créé le présent groupe de réflexion.

2|2| La question de la bioaccumulation

2|2|1| Préalable sémantique

Comme souvent dans les réunions, quels que soient la composition et le degré d'expertise des groupes, beaucoup de discussions proviennent du fait que les mots n'ont pas le même sens pour les uns et pour les autres. Il a donc été nécessaire de se mettre d'accord sur la signification à accorder aux termes utilisés.

La *bioconcentration* signifie la présence dans l'organisme (aquatique par exemple) de substances à une concentration supérieure ou inférieure à celle mesurée dans le milieu (l'eau par exemple) au même moment, le *facteur de bioconcentration* étant simplement le rapport des concentrations du contaminant dans l'organisme vivant (ou un de ses organes ou tissus) et dans le milieu ambiant. Ces facteurs de bioconcentration peuvent donc être supérieurs, égaux ou inférieurs à 1. Les facteurs de bioconcentration sont souvent définis en laboratoire et, dans ce cas, ne considèrent pas la voie trophique. Certains, et ce sera le cas dans le présent rapport, utilisent les termes de bioconcentration et de facteur de bioconcentration dans un sens général et purement *descriptif* pour signifier l'augmentation des concentrations de tritium observées dans des organismes vivants par rapport à leur milieu ambiant, sans préjuger de la nature exacte de la source de contamination, ni du moment où cette contamination s'est produite, ni des mécanismes biologiques sous-jacents. L'interprétation des facteurs de concentration observés doit être faite avec la prudence nécessaire.

Le terme de *bioaccumulation* est souvent utilisé dans le même sens général que celui de bioconcentration. Dans le vocabulaire de l'environnement de la Commission générale de terminologie et de néologie⁴, la bioaccumulation est un « processus selon lequel une substance polluante présente dans un biotope pénètre et s'accumule dans tout ou partie d'un être vivant et peut devenir nocive ; par extension, le résultat de ce processus ». Au sens strict du terme, la bioaccumulation résulte d'un phénomène d'accumulation progressive d'un contaminant ou d'une substance toxique dans un organisme, à partir de *diverses sources*, y compris l'atmosphère, l'eau et les *aliments*, jusqu'à l'obtention d'un état d'équilibre entre accumulation et élimination de la substance⁵, avec une concentration dans l'organisme supérieure à celle des sources de contamination. Si le phénomène se reproduit à chaque étape d'une chaîne trophique (augmentation cumulative, à mesure qu'on progresse dans la chaîne alimentaire, des concentrations d'une substance), on parle alors de *bioamplification*. Le concept inverse aboutit à une dilution.

Enfin, si l'organisme vivant a été exposé dans son passé à des concentrations ambiantes plus importantes qu'actuellement, il peut exister une *rémanence* de cette contamination passée dans certains de ses tissus, induisant un déséquilibre apparent par rapport à la concentration actuelle du contaminant dans l'environnement, plus faible qu'autrefois. Ce phénomène se produit lorsqu'une substance se fixe dans l'organisme, à une concentration inférieure ou égale à celle de la source d'origine, et y reste plus ou moins durablement selon la vitesse d'élimination de la substance. La rémanence peut également être observée dans des milieux abiotiques (sols ou sédiments) lorsque des processus physicochimiques conduisent à fixer durablement une substance dans le milieu.

2|2|2| Observations et interprétations

Les présentations ont porté sur les observations réalisées d'une part en milieu marin (baie de Cardiff, Sellafield, La Hague) et d'autre part en milieu continental.

- Pour le cas de l'usine de production de molécules marquées de Cardiff, on observe une nette bioconcentration de tritium. L'hypothèse d'une bioaccumulation/bioamplification existe dès lors que le tritium provient de molécules organiques tritiées. Les teneurs en tritium des éléments de la faune marine sous les formes tritium libre (HTO) et tritium organiquement lié (TOL), rapportées à celle de l'eau de mer sous la forme HTO, varient par des facteurs compris entre 1000 et 10000 à Cardiff.
- Dans le cas de Sellafield (site de traitement de combustibles BNGSL British Nuclear Group Sellafield Limited, qui rejette de l'eau tritiée), les teneurs en tritium des éléments de la faune marine (poissons, crustacés et mollusques) tant sous la forme tritium libre (HTO) que sous la forme tritium organiquement lié (TOL), rapportées à celle de l'eau de mer sous la forme HTO, varient d'un facteur 10 à Sellafield, avec une hystérésis (effet retard) de 1 à 2 ans entre les valeurs maximales de rejet et les valeurs maximales de tritium dans les mollusques et les poissons plats. Ces constatations conduisent à des interprétations différentes au sein du Groupe de réflexion.

Pour les uns, les concentrations anormalement élevées mesurées dans les poissons près de Sellafield peuvent résulter soit d'une rémanence d'un marquage des sédiments suite à des rejets antérieurs importants soit de l'existence dans les mêmes eaux de rejets de molécules organiques tritiées.

Pour d'autres, une bioaccumulation liée à des rejets d'eau tritiée est clairement en cause. Selon eux, l'hypothèse de courants marins faisant remonter des molécules organiques marquées au tritium rejetées par l'usine radiochimique de Cardiff est réfutée en raison du fait que les analyses devant la centrale nucléaire de Wylfa, située sur la côte ouest du Royaume-Uni entre Cardiff et Sellafield n'indiquent pas de présence décelable de tritium dans la faune marine.

D'autres enfin considèrent ne pas avoir d'information suffisante pour pouvoir se prononcer.

- En ce qui concerne le site de La Hague (installations de traitement des combustibles AREVA NC: rejet d'eau tritiée), l'IRSN estime que les travaux réalisés sur le tritium dans l'environnement de La Hague (campagnes IRSN-AREVA) ne mettent pas de bioaccumulation/bioconcentration de tritium en évidence. Notons que les teneurs en tritium sous la forme HTO dans l'eau de mer, à proximité des émissaires de Sellafield en mer d'Irlande et de La Hague en mer de la Manche, sont sensiblement les mêmes.

² Health Protection Agency, Review of Risks from Tritium, Report of the independent Advisory Group on Ionizing Radiation, November 2007

³ European Commission, EU Scientific Seminar 2007 "Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters, Radiation Protection No 152, Luxembourg, 2008

⁴ Journal Officiel de la République française, Avis et Communications, 4 février 2010

⁵ IRSN, Le tritium dans l'environnement, Rapport DEI 2009-05

L'ACRO rapporte qu'une bioconcentration (d'un facteur 2 à 7) a été mise en évidence dans une étude commune EDF – IRSN plus ancienne (années 1981-1985), sur un petit nombre d'échantillons disponibles de mollusques, de crustacés et de poissons. L'ACRO souligne, à partir des mesures effectuées sur les organismes marins de la baie de Cardiff, que les algues s'avèrent être de mauvais indicateurs pour suivre une contamination tritium de la faune en milieu marin, les concentrations en tritium étant nettement plus élevées (facteur supérieur à 10) dans les poissons que dans les algues. Elle indique que le choix de l'IRSN et d'AREVA en faveur de mesures dans les algues comme support de surveillance n'est pas le plus approprié pour identifier des phénomènes de concentration dans les organismes marins. L'ACRO souligne encore le nombre très limité de mesures effectuées entre 2000 et 2009 autour de La Hague sur des produits marins consommables (poissons plats, crustacés, mollusques, ...).

- Pour ce qui concerne le milieu terrestre, le CEA a présenté les mécanismes d'incorporation de l'eau tritiée dans les végétaux en s'appuyant sur les travaux effectués au sein de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique. Le CEA a rapporté également les résultats de mesures de surveillance du site de Valduc réalisées par le CEA et, en parallèle mais indépendamment, fournis par la SEIVA (association locale). L'activité de l'eau de combustion de la matière organique des végétaux se situe entre l'activité de la vapeur d'eau de l'air et l'activité de l'eau du sol. Pour le CEA, il n'apparaît pas de phénomène de concentration dans la matière organique. Selon le CEA, les calculs retenus par l'AIEA pourraient être pénalisants en surestimant la concentration de l'eau libre des végétaux.
- Enfin, dans les sédiments de cours d'eau impactés par des rejets de l'industrie horlogère, des concentrations en tritium organique élevées sont mesurées, avec des teneurs en tritium organiquement lié (TOL), rapportées à celle de l'eau de rivière sous la forme HTO, variant par des facteurs compris entre 1000 et 10000.

En conclusion, le groupe considère que seules des campagnes de mesures environnementales appropriées, définies selon une approche scientifique, permettront de lever les doutes et d'apprécier les différents facteurs en jeu, notamment la répartition du tritium entre les différents compartiments (y compris la matière organique des sédiments) et, pour les espèces vivantes, de mieux définir les composantes libre et organiquement liée du tritium. Pour ce qui est du milieu marin, ces campagnes devront porter sur un nombre suffisant d'échantillons de produits marins consommables appartenant à différents niveaux trophiques (poissons plats, crustacés, mollusques, ...).

Des publications anciennes sur des données environnementales (années 1970 – 1980) suggèrent que le tritium pourrait se bioamplifier dans certaines chaînes trophiques aquatiques et donc que la voie nutritionnelle est prépondérante sur la voie directe (eau). Depuis, les travaux de recherche sur ce sujet sont devenus très rares.

Les études réalisées à l'échelle internationale ont récemment fait l'objet de synthèse au niveau de l'AIEA (programme EMRAS 2006-2009) et de proposition de modèle de calcul (TRS N°472 et Tecdoc n°1616). Ces modèles prennent aujourd'hui explicitement en compte la matière organique tritiée élaborée à partir de l'eau tritiée (marquage d'un bol alimentaire), ce qui ne conduit pas à une augmentation des concentrations dans les niveaux trophiques supérieurs. Ceci ne préjuge cependant pas des transferts et incorporation suite à des rejets de molécules organiques tritiées particulières.

Le rapport de synthèse IRSN DEI 2009-05 précise que « sur la base des connaissances disponibles et dans les conditions d'activités environnementales "normales", il n'y a pas de phénomène identifié comme susceptible d'engendrer à terme une "bioaccumulation" significative et aucune mesure en attestant. » Ce rapport mentionne cependant que « dans les organismes animaux, il existe peu de données au regard de la complexité (nombre de processus impliqués, interactions et variabilité en fonction de l'espèce, de l'âge et des aliments) ».

Le groupe souligne le caractère encore fragmentaire des connaissances actuelles sur la rémanence et le comportement du tritium dans les sédiments et la nécessité de vérifier expérimentalement, par le biais d'études ciblées multidisciplinaires, sur la base de protocoles rigoureux, les hypothèses suggérées par les travaux anciens, et notamment l'influence possible de l'activité des microorganismes au niveau des sédiments aquatiques sur la remobilisation du tritium organique dans les organismes animaux aquatiques. D'une façon générale, les données scientifiques relatives à la transformation du tritium sous forme d'eau tritiée en tritium organique au long de la chaîne alimentaire devraient être renforcées ; des estimations quantitatives fiables sont nécessaires.

2|3| Métrologie

Lorsqu'on parle de tritium il est impératif de préciser de quelle forme il s'agit (HTO, HT, TOL) et, même au sein des TOL, il faut clairement définir si on parle de la chaîne alimentaire ou d'une molécule marquée à des fins de recherche.

Une des raisons des divergences des résultats de mesures et de leur interprétation réside dans les difficultés de métrologie et de représentativité des mesures et finalement de l'absence de protocole normalisé. Une clarification méthodologique est nécessaire pour pouvoir comparer les mesures de tritium dans l'environnement.

La Commission d'ETablisement des Méthodes d'Analyse (CETAMA), groupe de travail français qui a pour mission d'améliorer la qualité des mesures, en organisant des collaborations entre laboratoires, a fait le point sur la mesure du tritium. En pratique, la surveillance environnementale de routine actuelle en France ne porte que sur la mesure du tritium libre (HTO). La CETAMA travaille actuellement à la validation (exercice d'inter comparaison 2009-2010) des méthodes de mesure du tritium organique lié total. La validation de la mesure du TOL non échangeable (TOL NE) est prévue au plus tôt pour dans 5 ans. Ce type de mesure en routine pose encore des problèmes métrologiques (test de séparation TOL-E et TOL-NE encore peu fiable, temps d'analyse de quelques jours,) et ne fait pas l'unanimité : la CETAMA est d'avis que des recherches sont nécessaires pour améliorer cette mesure afin de mieux connaître les différents facteurs de transfert dans l'environnement.

Le groupe de réflexion s'est accordé sur la nécessité de poursuivre ce travail de validation et de normalisation des méthodes et protocoles de mesure et échantillonnage (« être sûr de ce qu'on mesure »), et de le conduire dans un cadre international.

2|3|1| Nature des rejets

Une autre question reste ouverte : en dehors des industries de synthèse de molécules marquées, existe-t-il d'autres sources de rejets de tritium sous forme organique ?

Le rapport IRSN précité souligne l'existence générale de lacunes sur la présence de molécules marquées de haute activité spécifique, sur leur devenir et donc sur les conséquences en terme d'accumulation du tritium. Selon l'IRSN, réaliser des études de métrologie des différentes formes physico-chimiques (spéciation) sous lesquelles le tritium organique est susceptible d'atteindre l'homme est prioritaire.

AREVA estime pour ce qui le concerne qu'après plus de 10 ans d'exploitation de la charge du solvant de ses usines, aucun transfert du tritium des zones tritiées vers les zones non tritiées via le solvant n'a été constaté et, sur la base des facteurs de concentration observés dans les algues, mollusques, crustacés et poissons, en conclut que la forme chimique des rejets est essentiellement HTO.

Vu la grande diversité des molécules organiques tritiées, le groupe s'accorde sur la nécessité d'être prudent dans les conclusions et les extrapolations et de procéder à une spéciation chimique des rejets des sites potentiellement concernés.

2|4| La question des effets du tritium sur la santé

2|4|1| Pertinence du concept de dose moyenne à l'organe

Les effets du rayonnement bêta du tritium doivent-ils être réévalués ?

La question provient du fait que l'isotope tritium présente quelques spécificités : le parcours des électrons est très court (inférieur au diamètre de la cellule et même du noyau cellulaire) et la densité d'ionisation élevée, ce qui, si les molécules tritiées se trouvent dans le noyau cellulaire, est susceptible de provoquer des dommages en grappes au niveau de l'ADN. Deux autres phénomènes contribuent aussi à renforcer localement les effets du tritium : sa transmutation in situ en hélium et l'enrichissement en eau tritiée de l'eau d'hydratation de l'ADN (« buried tritium » ou « effet isotopique »). L'ensemble de ces effets physico-chimiques conduit à des lésions, qui peuvent conduire à leur tour à l'apparition de mutations dans l'ADN. Si la distribution de la dose est relativement homogène quand le tritium est sous forme d'eau tritiée, elle est par contre hétérogène lorsque celui-ci est incorporé dans l'ADN ou les histones. La question se pose dès lors de la pertinence du concept de dose moyenne à l'organe comme indicateur de risque. Autrement dit, les doses calculées selon la méthode classique (en utilisant les facteurs de conversion Sv/Bq de la CIPR) pourraient conduire à une estimation incorrecte du risque.

Il serait utile pour comparer les études sur les effets biologiques et sur la santé d'harmoniser les méthodes permettant d'évaluer la dose, ceci à différentes échelles (cellules et organes), en fonction de la forme de tritium, de la voie et durée d'exposition et du délai avant analyse.

Ces incertitudes et lacunes rendent nécessaires des recherches complémentaires sur l'efficacité biologique du tritium, en particulier pendant les divers stades de la grossesse.

Dans son récent rapport⁶, l'IRSN, tout en estimant que « l'approche dosimétrique du risque est considérée comme robuste et place le tritium parmi les radionucléides les plus faiblement radiotoxiques », indique que « des données sur le métabolisme et les effets biologiques associés au tritium organique en situations d'expositions environnementales font défaut » et qu'il convient de conduire des études radiobiologiques expérimentales sur différentes formes de TOL, avec un plateau technique adapté, dans un cadre de coopérations à l'échelle de l'Europe.

Le groupe s'accorde sur la nécessité de compléter les connaissances sur les effets du tritium, en s'appuyant sur des méthodes récentes qui permettent de caractériser de manière rigoureuse les formes physico-chimiques utilisées (en couvrant une échelle de concentration incluant celle des rejets industriels) et les mécanismes biologiques en jeu, en ne se limitant pas à l'aspect de la cancérogenèse et en mettant l'accent sur l'âge au moment de l'exposition et sur les différences entre expositions accidentelles et chroniques.

2|4|2| La question du w_R et de l'EBR

Pour rappel, le facteur de pondération pour les rayonnements (w_R) est utilisé en radioprotection pour tenir compte de l'effet du type de rayonnement dans le cadre de l'induction d'effets stochastiques à long terme tels que le *cancer* ou les effets héréditaires. Les avis du groupe sont partagés quant à la nécessité d'en augmenter la valeur (actuellement prise égale à 1) pour le tritium.

Contrairement aux conclusions du rapport britannique AGIR en 2007 et des experts de l'article 31 du traité EURATOM (cf séminaire scientifique de 2007), la CIPR a maintenu récemment son choix en faveur d'un facteur de pondération pour les rayonnements de 1 pour le tritium et les émetteurs bêta de faible énergie, compte tenu, d'une part des incertitudes et, d'autre part, des objectifs purement prospectifs du système de radioprotection et de la priorité à mettre sur l'optimisation et les contraintes de dose.

L'IRSN considère que l'EBR du tritium pour les effets stochastiques, à partir duquel le facteur de pondération w_R est proposé, est plus proche de 2 que de 1, mais estime que le choix d'un facteur de pondération w_R de 2 plutôt que 1 n'a qu'une importance mineure dans les situations de routine et n'est à prendre en compte que dans des situations d'évaluation de risque individuel. Cet avis n'est pas partagé par l'ACRO et l'ANCCLI qui plaident au contraire, par application du principe de précaution, pour un facteur de pondération de 5. Il n'y a pas de consensus sur ce point au sein du groupe.

2|4|3| Les études épidémiologiques

Une revue de la littérature montre que les études sur travailleurs exposés ne mettent pas en évidence d'excès de risque de cancer. Cependant, leur robustesse est limitée par la faible puissance statistique et/ou le manque d'information sur la dose tritium. Il convient de noter que les doses tritium enregistrées sont de l'ordre d'une dizaine de mSv ce qui implique des cohortes très importantes pour mettre en évidence une différence statistique significative entre exposés et témoins. Une approche internationale coordonnée s'appuyant sur des évaluations dosimétriques standardisées serait nécessaire. En France, la création d'une base de données tritium serait un préalable indispensable à la prise en compte du tritium dans le cadre d'études épidémiologiques.

Il existe par ailleurs très peu d'études se rapportant aux effets du tritium sur la population. Les études existantes sont de type géographique et peu informatives. De façon générale, seules les études multicentriques internationales ont potentiellement la puissance statistique suffisante pour apporter une réponse épidémiologique pertinente. Pour ce qui concerne les populations riveraines des installations nucléaires, le problème de la puissance statistique des études épidémiologiques est d'autant plus aigu que les doses sont faibles. La question de la détectabilité épidémiologique du risque tritium est donc posée et l'intérêt potentiel d'études moléculaires par biomarqueurs est souligné. En pratique, actuellement, les études épidémiologiques sur le tritium dans les populations s'avèrent non pertinentes. Ce qui ne signifie pas que les surveillances épidémiologiques ne soient pas nécessaires, comme pour tout site à risque industriel.

Le groupe convient de l'importance d'analyser la faisabilité d'études épidémiologiques chez les travailleurs en France en considérant l'opportunité d'acquérir des données relatives à l'exposition au tritium et de l'intérêt de traiter ces données de manière harmonisée avec les autres études initiées au plan international.

⁶ IRSN, *Éléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium*, 2009

2|4|4| Les effets héréditaires

Dans l'espèce humaine, il n'a pas été observé jusqu'ici d'excès d'effets héréditaires, ni chez les descendants de personnes irradiées (survivants des explosions nucléaires d'Hiroshima-Nagasaki ; patients irradiés, travailleurs exposés aux rayonnements ionisants), ni dans les régions à forte radioactivité naturelle.

Les estimations quantitatives de risque sont donc basées sur des données indirectes : d'une part, sur la fréquence spontanée de mutations dans la lignée germinale dans l'espèce humaine, d'autre part sur des études expérimentales de suivi de la descendance de rongeurs irradiés.

Il existe très peu de données spécifiques au tritium et les évaluations de risque résultent de calculs réalisés à partir de données relatives aux effets héréditaires des radiations ionisantes en général.

Ainsi, partant du fait que les ovocytes ne présentent pas de division cellulaire depuis la période fœtale jusqu'à la fécondation, des auteurs britanniques ont calculé le risque qu'une femme transmette une anomalie radio induite 30 ans après consommation de poissons de la baie de Cardiff (TOL) par sa mère pendant la grossesse. La dose à l'ovocyte a été estimée à 2,7-5,4 mGy et le risque calculé est un excès de risque indétectable.

Les quelques études expérimentales menées aux USA sur l'induction de mutations (spermatogenèse) après exposition chronique à HTO donnent des résultats analogues à ceux obtenus après irradiation X ou gamma. Ces études expérimentales appellent cependant des réserves sur la validité de l'extrapolation inter-espèces.

Les données relatives à l'induction possible d'effets héréditaires doivent être évaluées de façon critique et avec prudence. De nouvelles approches méritent d'être investiguées, en tenant compte des avancées actuelles de la biologie. Ainsi, de nouveaux outils de la génétique et de l'imagerie cellulaire permettent l'analyse de la transmission des lésions et de leurs conséquences (étude des mutations récessives, étude des régions non codantes importantes pour le contrôle de l'intégrité du génome, de l'expression des gènes, ...). Par ailleurs, les outils de la génomique permettent par exemple d'identifier la transmission d'un caractère héréditaire (non apparent spontanément) dans des familles sur plusieurs générations.

2|4|5| Le cas des expositions in utero

L'ex-président de la SSK (Commission de radioprotection allemande) a présenté et discuté les résultats expérimentaux relatifs aux effets de l'exposition de l'embryon à la thymidine tritiée et à l'arginine tritiée (précurseur des histones) au stade préimplantatoire de la grossesse (expériences in vitro). Vu l'hétérogénéité de la distribution (incorporation spécifique dans l'ADN), la thymidine tritiée est de 1000 à 5000 fois plus efficace que l'eau tritiée pour l'induction d'effets délétères et ce pour une même activité appliquée. L'effet est encore plus marqué pour l'arginine tritiée (facteur 10 000) et est observé pour des activités plus faibles. Vu les mécanismes en jeu, cette observation pourrait être pertinente en matière de mutagenicité pour d'autres types de cellules et de systèmes. Il est à noter que ces études réalisées in vitro et avec des activités spécifiques élevées ne sont pas nécessairement représentatives de la situation in vivo.

Un exposé de synthèse concernant les effets du tritium in utero a été présenté par le CEA (Direction des Sciences du Vivant). Le tritium (HTO ou molécules organiques tritiées) traverse aisément la barrière placentaire. Comme pour les autres rayonnements ionisants, le rayonnement bêta du tritium engendre localement apoptose et mutagenèse pouvant avoir des conséquences tumorigènes ou fonctionnelles par altération de l'organogenèse (mécanismes de prolifération, migration et différenciation étroitement liés chez l'embryon). Le système nerveux central semble être une cible particulièrement vulnérable : la concentration en tritium y est 3 à 20 fois plus élevée que dans les autres organes et, pour quelques cGy (ce qui est de l'ordre du GBq.L⁻¹ de tritium), on observe une altération des fonctions cognitives et une réduction du nombre de cellules

neurales. Le transfert des molécules organiques tritiées vers le fœtus est un transport actif et celles-ci sont incorporées préférentiellement dans l'ADN des cellules en multiplication active. Le CEA conclut que les études actuellement disponibles sont difficiles à analyser en raison de leur caractère disparate et qu'une analyse plus approfondie des effets du tritium (HTO et molécules organiques tritiées) après exposition au cours du développement in utero serait nécessaire.

Tous s'accordent sur le fait que des recherches complémentaires sont indispensables pour améliorer nos connaissances sur les effets de l'exposition de l'embryon et du fœtus au tritium.

2|5| Recommandations du groupe de réflexion « impact du tritium »

Les diverses recommandations élaborées par le groupe sont regroupées ci-dessous. Clairement, le mot-clé qui les caractérise est celui de « recherches » (complémentaires).

Concernant l'environnement, le groupe recommande (par ordre de priorité) de :

1. Poursuivre le travail de validation et de normalisation des méthodes et protocoles de mesure et échantillonnage (« être sûr de ce qu'on mesure »), et le conduire dans un cadre international ;
2. Procéder à des campagnes de mesures environnementales appropriées, définies selon une approche scientifique, qui permettront de lever les doutes et d'apprécier les différents facteurs en jeu, notamment la répartition du tritium entre les différents compartiments (y compris la matière organique des sédiments) et, pour les espèces vivantes, de mieux définir les composantes libre et organiquement liée du tritium. Pour ce qui est du milieu marin, ces campagnes devront porter sur un nombre suffisant d'échantillons de produits marins consommables appartenant à différents niveaux trophiques (poissons plats, crustacés, mollusques, ...) ;
3. Vu la grande diversité des molécules organiques tritiées, d'être prudent dans les conclusions et les extrapolations et de procéder à une spéciation chimique des rejets des sites potentiellement concernés ;
4. Vu le caractère encore fragmentaire des connaissances actuelles sur la rémanence et le comportement du tritium dans les sédiments, vérifier expérimentalement, par le biais d'études ciblées multidisciplinaires, sur la base de protocoles rigoureux, les hypothèses suggérées par les travaux anciens, et notamment l'influence possible de l'activité des microorganismes au niveau des sédiments aquatiques sur la remobilisation du tritium organique dans les organismes animaux aquatiques. D'une façon générale, les données scientifiques relatives à la transformation du tritium sous forme d'eau tritiée en tritium organique au long de la chaîne alimentaire devraient être renforcées ; des estimations quantitatives fiables sont nécessaires.

Concernant les effets sanitaires, le groupe recommande (par ordre de priorité) de :

1. Compléter les connaissances sur les effets du tritium, en s'appuyant sur des méthodes récentes qui permettent de caractériser de manière rigoureuse les formes physico-chimiques utilisées (en couvrant une échelle de concentration incorporant celle des rejets industriels) et les mécanismes biologiques en jeu, en ne se limitant pas à l'aspect de la cancérogenèse et en mettant l'accent sur l'âge au moment de l'exposition et sur les différences entre expositions accidentelles et chroniques ;
2. Améliorer les connaissances sur les effets de l'exposition de l'embryon et du fœtus au tritium. Des recherches complémentaires à ce sujet sont indispensables ;
3. Evaluer de façon critique et avec prudence les données relatives à l'induction possible d'effets héréditaires. De nouvelles approches méritent d'être investiguées, en tenant compte des avancées actuelles de la biologie ;
4. Analyser la faisabilité d'études épidémiologiques chez les travailleurs en France en considérant l'opportunité d'acquérir des données relatives à l'exposition au tritium et traiter ces données de manière harmonisée avec les autres études initiées au plan international ;

5. Utiliser un facteur de pondération pour les rayonnements (w_R) de 2 (au lieu de 1) dans les situations d'évaluation de risque individuel. Il n'y a pas de consensus au sein du groupe sur le facteur à utiliser dans les situations de routine.

3 | Synthèse et recommandations du groupe de réflexion « Tritium : défense en profondeur »

3|1 | Les sources de rejets tritiés

L'équilibre naturel du tritium a été profondément modifié par les essais atomiques atmosphériques qui ont libéré dans l'environnement environ 240 EBq (650 kg) de tritium de 1945 à 1963. Cette émission a porté la concentration de l'eau de pluie à quelques centaines de Bq.L⁻¹ dans l'hémisphère Nord ; elle est actuellement de l'ordre de 1 Bq.L⁻¹. Les océans constituent le récepteur de l'ensemble du tritium rejeté. En 1998 la concentration de l'eau de mer en surface au niveau de l'équateur était de 0,1 Bq.L⁻¹. La concentration est en moyenne de l'ordre de 10 Bq.L⁻¹ dans la Manche, localement de quelques centaines de Bq.L⁻¹ en relation avec les rejets des installations nucléaires. Dans certains cours d'eau, la valeur peut atteindre localement quelques centaines de Bq.L⁻¹.

L'ensemble des réacteurs nucléaires mondiaux rejettent annuellement 12 000 TBq (0,035 kg) de tritium essentiellement par voie liquide sous forme d'eau tritiée, et 6000 TBq (0,018 kg) par voie gazeuse. Le traitement du combustible, actuellement essentiellement l'usine de La Hague, ajoute 12 000 TBq (0,035 kg) de rejets par voie liquide et 70 TBq (0,0002 kg) par voie gazeuse.

En France, les rejets en tritium des installations militaires ont fortement décliné sur les 20 dernières années. La tendance générale est également une diminution mais elle résulte de la disparition progressive du stock constitué par les émissions des essais en atmosphère (dont il demeure environ 10,5 EBq (30 kg) en 2010).

L'évolution des techniques industrielles civiles et l'application des principes d'optimisation ont conduit à réduire fortement les rejets d'effluents à l'environnement pour la très grande majorité des éléments radioactifs au cours des dernières décennies. La situation est différente pour le tritium, les gaz rares et le carbone 14. Les sources industrielles de rejet de tritium ont doublé par exemple en vingt ans au centre de traitement de La Hague (la production d'électricité produite par ces combustibles traités ayant doublé pendant cette période).

L'extension du parc, l'évolution des combustibles d'une part et du contrôle de la réactivité dans les REP d'autre part, puis, dans un futur encore incertain, la mise en service des réacteurs à fusion, laissent prévoir que cette tendance est durable, même si la perspective d'énergie de fusion donne initialement au tritium une forte valeur ajoutée qui aura pour effet d'en diminuer les pertes.

3|2 | La question de la réduction de l'impact du tritium

La convention OSPAR recommande de faire tendre les concentrations des radionucléides vers leurs niveaux naturels, en tenant compte de leur impact et des techniques de réduction (accords de Sintra). Il est donc légitime de chercher à diminuer l'impact du tritium, même si celui-ci est faible. Cet objectif doit être envisagé dans une perspective globale de radioprotection car les solutions envisagées pour réduire l'impact du tritium ne sauraient entraver la démarche générale de diminution des doses collectives ni aboutir à un surcroît inéquitable de doses pour les travailleurs.

Cette nécessité de faire référence à l'évaluation de l'impact radiologique global des pratiques fait apparaître le potentiel radiotoxique relativement faible, quoique disputé, mais différencié du tritium gazeux, de l'eau tritiée et des composés organiques (TOL : tritium organique lié) par rapport aux autres sources d'exposition de l'homme. Avec les facteurs de conversion de dose actuellement retenus par la législation, l'exposition au tritium est à l'origine de moins de 0,1 µSv par an pour les groupes de référence de La Hague (contribution inférieure à 1% de l'impact ajouté à la radioactivité naturelle) et de 0,4 µSv pour ceux des villages proches de Valduc. Ces facteurs de conversion pourraient être revus à la hausse (voir les conclusions du groupe de travail sur l'impact radiologique), mais quelles que soient les valeurs définitivement retenues le résultat attendu ne semble pas susceptible de modifier ni l'ordre de grandeur de l'impact ni l'optimisation des pratiques.

La source initiale de production du tritium en France provient des REP. La production dans le combustible reste séquestrée et ne contribue que marginalement à l'exposition de l'homme. L'essentiel des rejets tritiés provient de l'activation neutronique dans le circuit primaire. Il est envisageable de réduire cette production en augmentant la concentration isotopique de bore 10 et de lithium 7 mais le bénéfice serait faible. Il n'est pas envisageable de substituer le bore dans le circuit primaire des REP. Les grappes sources secondaires ajoutent aux rejets une contribution qui peut être faiblement réduite mais le bilan n'en est pas disponible. Environ 98% des rejets des REP se font par voie liquide. Compte tenu de l'impact radiologique relatif des émissions gazeuses, 100 fois plus élevé en moyenne pour les sites en bord de mer, par rapport aux rejets liquides, il pourrait être intéressant d'envisager d'augmenter encore le ratio d'émissions liquides, cependant cette solution suppose des exutoires appropriés qui ont déjà été pris en compte dans les études d'impact. Compte tenu des faibles impacts radiologiques et des volumes d'effluents à traiter la détritiation n'est pas réalisable.

EDF a un programme d'évolution des combustibles qui a pour objectif d'augmenter la production d'électricité par tonne d'uranium en diminuant la quantité des déchets, mais qui entraîne une augmentation de la production de tritium. L'ACRO relève qu'à Flamanville, le doublement des rejets tritiés n'est lié qu'à une augmentation de 4,5% de la production électrique.

L'usine de traitement du combustible de La Hague est la source principale de rejets tritiés effectués en très grande majorité par voie liquide, compte tenu de l'impact relatif mille fois plus faible que par voie atmosphérique. Compte tenu des volumes potentiellement à traiter, de l'ordre de 40 000 m³ par an, et de la très faible activité volumique au moment du rejet, la détritiation n'est pas réalisable avec les techniques disponibles ; réduire le volume des effluents en tête de procédé aboutirait à une exposition professionnelle incompatible avec l'optimisation du procédé. Différents axes de réflexion, R&D, et amélioration des procédés ont été identifiés, notamment :

- la nécessité d'évaluer quelles évolutions du procédé ou options de traitement des combustibles ont un avenir industriel (voloxydation, pyrométallurgie...) ;
- la réflexion nécessaire à la conception d'une usine de traitement qui ne disposant pas des mêmes avantages de site en matière de capacité radiologique n'obtiendrait pas des autorisations de rejets équivalents à ceux de La Hague.

Peu de discussions ont été consacrées à PHENIX et SUPERPHENIX pour la filière à neutrons rapides bien que la perspective du programme GEN IV doive en faire assez prochainement un sujet d'actualité. La production dans le combustible est plus élevée que dans les REP, 95% du tritium formé dans le combustible passe dans le sodium fondu du circuit primaire. Les barres de contrôle borées ajoutent une contribution importante, avec formation de méthane tritié. Les rejets de tritium, normalisés par GWe sont globalement 2 fois plus élevés que dans les REP. Il est envisageable de récupérer et de valoriser le tritium du sodium fondu du réacteur SUPERPHENIX. L'impact radiologique de cette opération reste à préciser.

Une faible fraction du tritium produit dans les réacteurs nucléaires est valorisée par de petits producteurs pour la synthèse de molécules marquées à usage industriel (luminescence) et pour la recherche. Bien que ces sources ne représentent qu'un faible volume de déchets, elles peuvent être à l'origine de marquages significatifs fortuits dans l'environnement. L'impact radiologique en est difficile à préciser, fortement dépendant de la spéciation. Il est nécessaire de prévoir un exutoire approprié pour la gestion de ces sources.

Des déchets tritiés sont stockés dans différents centres de l'ANDRA. Le Centre Manche (CSM) est à l'origine d'un marquage en tritium de la nappe pouvant atteindre plusieurs centaines de milliers de Bq/L par endroit, suscitant des appréciations diverses sur son évolution possible dans le temps. Il est nécessaire de poursuivre la caractérisation de la source et des transferts vers les exutoires et de conforter ces prévisions par des mesures appropriées. Les centres de Soullaines et de Morvilliers sont soumis à une gestion prudente de la capacité radiologique en tritium et à des règles contraignantes d'acceptation des colis. Cette situation permet de respecter un faible marquage environnemental. Toutefois l'ANDRA ne dispose pas de réelles autorisations pour les déchets tritiés, ce qui laisse orphelines de nombreuses sources de déchets tritiés. La solution explicitée dans le rapport CEA rédigé dans le cadre de la loi de 2006 est un entreposage d'une cinquantaine d'années en attendant l'ouverture d'un nouveau site de stockage qui disposera des autorisations appropriées.

Les activités de défense ont des installations de purification, recyclage et d'entreposage de matières nucléaires, pour la fabrication de sous-ensembles d'armes, pour le traitement ou la neutralisation de déchets. Il s'agit notamment des centres du CEA de Valduc, Marcoule et Bruyères le Châtel. La surveillance des installations montre une diminution des rejets de plus d'un facteur 100 depuis les années 1970-1980, avec un rejet de 95 TBq (0,3 g) par voie gazeuse en 2007 à Valduc. La réduction des rejets est obtenue par détritiation sous traitement thermique des déchets fortement tritiés de manière à séparer le support solide de l'eau tritiée, piégée ensuite sur zéolithe. Les volumes résultants sont faibles et l'entreposage se fait sur le centre de Valduc. La pratique est optimisée. Des recherches sont à poursuivre sur la valorisation des eaux tritiées. Un manque de données concernant certaines installations sous la responsabilité exclusive du ministère de la défense (réacteurs embarqués) a été constaté par le groupe de travail.

Les réacteurs à fusion se présentent comme une voie possible d'énergie dans un futur à préciser. L'installation de recherche ITER, qui fournira les éléments pour concevoir un prototype, doit entrer en service en 2019 pour une phase non-nucléaire et environ en 2025 en phase nucléaire et comportera un inventaire d'environ 1 kg de tritium dans les procédés soit 358 PBq. On ne dispose pas actuellement des autorisations de rejets tritiés. Le principe de fonctionnement d'ITER intègre la notion de défense en profondeur vis-à-vis du tritium qui est le combustible de la machine. Ces notions impliquent de multiples barrières de confinement statiques et des systèmes de confinement dynamiques dont la détritiation et le traitement de l'atmosphère à la source, la limitation des quantités d'eau en entrée et le recyclage et la détritiation de l'eau. Une installation est entièrement dédiée au tritium, à l'injection du mélange Deutérium-Tritium dans le tokamak, à l'extraction, la récupération et la purification du tritium pour sa réutilisation. La faisabilité du démantèlement a été intégrée dans la conception, elle suit le PNGMDR. Elle prend en compte la classification des déchets qui seront générés, de type TFA, FMA et MAVL, les exutoires disponibles et la disponibilité du site pour l'entreposage de ses propres déchets d'exploitation.

3|3| Recommandations du groupe de réflexion «défense en profondeur»

En conclusion il est apparu au groupe de travail que les recommandations et constats suivants pouvaient être proposés.

- La maîtrise des procédés actuels permet la comptabilisation des rejets effectués dans l'ensemble des installations ; pour le centre de stockage de la Manche, il est souhaitable d'améliorer la caractérisation de la source et des transferts vers les exutoires et de conforter ces prévisions par des mesures.
- La détritiation pour les REP des CNPE n'aurait qu'un effet limité sur l'impact radiologique et n'est pas réalisable actuellement à un coût acceptable. L'ACRO et l'ANCCLI, par application du principe de précaution, s'opposent à l'utilisation de nouveaux combustibles tant qu'il y aura des doutes sur l'impact du tritium.
- La détritiation pour l'usine de traitement du combustible irradié de La Hague n'est pas réalisable avec les meilleures techniques actuellement disponibles, et n'aurait qu'un effet limité sur l'impact radiologique. La stratégie rejets/déchets pour favoriser le stockage et récupération du tritium à un coût acceptable n'est envisageable que pour les matériaux d'activité élevée en tritium. L'ACRO et l'ANCCLI demandent que les combustibles les plus anciens soient traités en priorité pour limiter les rejets, alors qu'AREVA et EDF considèrent que la pratique est optimisée sur ce point.
- Pour l'ACRO et l'ANCCLI, il est nécessaire de réduire la production de tritium des installations civiles et militaires.
- Le confinement absolu du tritium est un problème à la fois technique et financier qui conditionne la mise au point des conteneurs.
- La gestion des déchets tritiés au niveau des stockages futurs nécessite des autorisations spécifiques en permettant la comptabilisation au niveau approprié. Des filières spécifiques doivent être accessibles aux petits producteurs.
- L'évaluation de l'impact du tritium des stockages de surface nécessite l'amélioration continue de la connaissance des termes sources, des différentes voies de transfert depuis les déchets et des processus de transfert associés, et, in fine de la quantification des poids relatifs des différentes voies de transfert en fonction des solutions techniques retenues.
- La mise en service d'entreposages de décroissance dédiés aux déchets tritiés des différentes filières doit être effectuée, conformément au décret en application du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR 2007-2009).
- Il est nécessaire de suivre le développement des travaux de détritiation menés pour ITER.

Inventaire des sources de tritium et synthèse bibliographique

Sommaire

- 14** Sources de production et gestion du tritium produit par les installations nucléaires (IRSN)
- 44** Le tritium dans l'environnement : synthèse des connaissances (IRSN)

Sources de production et gestion du tritium produit par les installations nucléaires

Marc Philippe, François Besnus
Direction de la sûreté des usines, des laboratoires,
des transports et des déchets - IRSN Rapport DSU n°217

Abstract

This report synthesizes current knowledge of tritium, its sources of production and its behavior in reactors and nuclear facilities. In addition, liquid and gaseous tritiated releases and the processes of separation and possible trapping of this radionuclide are displayed. This report also provides elements of reflection on the management of tritium produced currently by these facilities, both in France and abroad. It presents insights on the relevance of current management modes of tritiated liquid and solid waste and also on the associated measures to reduce releases of tritium into the environment.

Résumé

Ce rapport synthétise les connaissances actuelles concernant le tritium, ses sources de production et son comportement dans les réacteurs et les installations nucléaires. Les rejets tritiés sous forme liquide et gazeuse ainsi que les procédés de séparation et de piégeage envisageables y sont abordés. Ce rapport apporte aussi des éléments de réflexion sur la gestion du tritium produit aujourd'hui par ces installations, tant en France qu'à l'étranger. Il présente un éclairage sur la pertinence des modes de gestion actuels des effluents et des déchets solides tritiés ainsi que des moyens associés pour réduire les rejets de tritium dans l'environnement.

Mots-clés

Tritium, déchets tritiés, installations nucléaires, sources, production, gestion, séparation, piégeage, conditionnement, stockage

1 | Introduction

Le tritium est présent en permanence à l'état naturel dans l'environnement ; les quantités observées ont toutefois fortement augmenté en raison des essais d'armes thermonucléaires dans l'atmosphère et du développement de l'énergie nucléaire. Aujourd'hui, c'est l'un des principaux radionucléides rejetés dans l'environnement par les installations nucléaires (principalement les réacteurs nucléaires et les usines de traitement de combustibles usés) en fonctionnement normal. En effet, contrairement à la plupart des autres radionucléides produits par ces installations, dont les activités rejetées ont fortement diminué durant les 20 dernières années, et compte tenu des difficultés, dans l'état actuel des technologies disponibles, pour séparer et piéger le tritium, celui-ci est généralement rejeté en totalité. Toutefois, malgré la dominance de ce radionucléide dans les effluents rejetés par ces installations, les doses qui lui sont imputables sont en général très faibles, compte tenu de son comportement particulier dans l'environnement (forte mobilité sous forme d'eau tritiée et dilution en relation avec le cycle de l'eau, absence de bioaccumulation par la voie alimentaire) et de son faible coefficient de dose efficace en rapport avec son émission bêta de faible énergie et sa biocinétique (faible radiotoxicité).

Certaines publications récentes (rapports RIFE, AGIR 2007...) vont dans le sens d'une remise en cause de l'appréciation du caractère fai-

blement radiotoxique du tritium et de sa non-propension à s'accumuler dans les composés environnementaux et les organismes. En outre, des demandes de renouvellement d'autorisation de rejets et de prélèvements d'eau pour les CNPE d'EDF, intégrant une augmentation des limites de rejets en tritium liée à l'évolution des gestions de combustibles, sont formulées depuis quelques années et de nouvelles installations (ITER) seront amenées à utiliser du tritium en grande quantité dans les prochaines années. Dans ce contexte, il est apparu utile de réaliser un état des lieux des connaissances relatives :

- aux sources de production de tritium et à son comportement dans les installations nucléaires actuelles et les installations futures ;
- aux rejets de ce radionucléide sous forme liquide et gazeuse et à l'impact dosimétrique associé ;
- aux modes de gestion mis en œuvre actuellement ou envisageables pour ce radionucléide, tenant compte des possibilités de traitement et de réduction à la source.

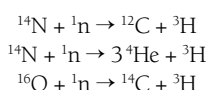
Cet article a pour objectif de synthétiser ces connaissances, tout en ne recherchant pas l'exhaustivité, et d'apporter quelques éléments de réflexion sur la gestion du tritium produit aujourd'hui par les installations nucléaires, tant en France qu'à l'étranger. Il apporte en particulier un éclairage sur la pertinence des modes de gestion actuels des effluents et déchets solides tritiés et, corrélativement, sur l'intérêt et les moyens de réduire les rejets de ce radionucléide dans l'environnement.

En préambule, on rappellera que les quantités de tritium sont exprimées, soit en activité (Becquerel et multiples allant jusqu'au PetaBecquerel (10^{15} Bq) et ExaBecquerel (10^{18} Bq)), soit en grammes. Un gramme de tritium équivaut à une activité de $3,58 \cdot 10^{14}$ Bq (0,358 PBq).

Le tritium a deux origines, naturelle et anthropique, c'est-à-dire produit par les activités humaines.

2 | Le tritium d'origine naturelle

Bien que sa période radioactive soit courte (12,3 ans), le tritium est présent en permanence à l'état naturel dans l'environnement. Celui-ci est produit naturellement, principalement par l'action des neutrons émis par le rayonnement cosmique sur l'azote et l'oxygène de l'air :



La production tellurique, par activation neutronique sur le lithium 6, est extrêmement faible devant la production atmosphérique.

Environ 99 % du tritium est transformé en eau tritiée et suit le cycle normal de l'eau, de la haute atmosphère jusqu'à la mer. L'UNSCEAR [1] évalue l'inventaire global du tritium naturel à environ 1 300 PBq (soit 3,5 kg), ce qui correspond à une production annuelle comprise entre 50 et 70 PBq (soit entre 0,15 et 0,2 kg), en supposant que la production équilibre la décroissance radioactive.

3 | Le tritium d'origine artificielle

Le tritium d'origine artificielle provient principalement des essais nucléaires aériens, de l'industrie nucléaire (réacteurs nucléaires et usines de traitement de combustibles usés) et, pour une moindre part, d'autres activités industrielles (peintures luminescentes, recherches en biologie et pharmacie...).

3|1 | Les essais nucléaires atmosphériques

La part prédominante du tritium dans l'environnement résulte des essais nucléaires atmosphériques réalisés principalement entre 1945 et 1963. L'énergie libérée par l'ensemble des 520 tests réalisés durant cette période est de l'ordre de 520 Mt (dont 217 et 328 Mt pour les engins respectivement à fission et fusion thermonucléaire). Ces essais ont libéré au total environ 240 EBq de tritium (soit plus de 650 kg) répartis pour les trois quarts dans l'hémisphère Nord et pour le quart restant dans l'hémisphère Sud, les taux de production de tritium rapportés à l'unité d'énergie étant de l'ordre de 0,026 et 740 PBq.Mt⁻¹, respectivement pour la fission et la fusion [2]. Les quantités de tritium rejetées dans l'atmosphère liées aux essais souterrains sont négligeables devant celles issues des essais atmosphériques. Du fait de l'arrêt des tirs aériens et de la décroissance radioactive du tritium, il reste actuellement de l'ordre de 30 kg répartis pour la plus grande partie dans les océans,

ainsi que dans les eaux continentales et l'atmosphère, sous forme d'eau tritiée. Avant les essais atmosphériques, les activités volumiques dans les eaux de pluie, les fleuves et les océans étaient respectivement de 0,6 Bq.L⁻¹, 0,3-0,8 Bq.L⁻¹ et inférieur à 0,1 Bq.L⁻¹. L'activité de l'eau de pluie a atteint 150 Bq.L⁻¹ en 1963 dans l'hémisphère Nord et a décru considérablement depuis (de l'ordre du Bq.L⁻¹ actuellement).

3|2 | L'industrie nucléaire

Les réacteurs nucléaires et les usines de traitement de combustibles usés (principalement les sites de La Hague, Sellafield, Tokai-Mura et Rokkasho-Mura) constituent les principales sources d'émissions de tritium dans l'environnement. La plupart de ces installations étant situées en bord de mer, de fleuve ou de rivière, ces rejets s'effectuent essentiellement par voie liquide. Les quantités de tritium rejetées dépendent toutefois du type de réacteur nucléaire et de la quantité d'énergie fournie, ainsi que des procédés mis en œuvre pour les autres types d'installations nucléaires.

En fonction des informations disponibles, seront abordés successivement, pour chaque type d'installation, les sources de production de tritium (directes et indirectes) et les paramètres influant sur cette production, le comportement spécifique de ce radionucléide, les stratégies de gestion adoptées, les niveaux des rejets de tritium par voies liquide et gazeuse et l'impact dosimétrique associé. Les aspects réglementaires seront également succinctement abordés.

3|2|1 | Les réacteurs nucléaires de puissance

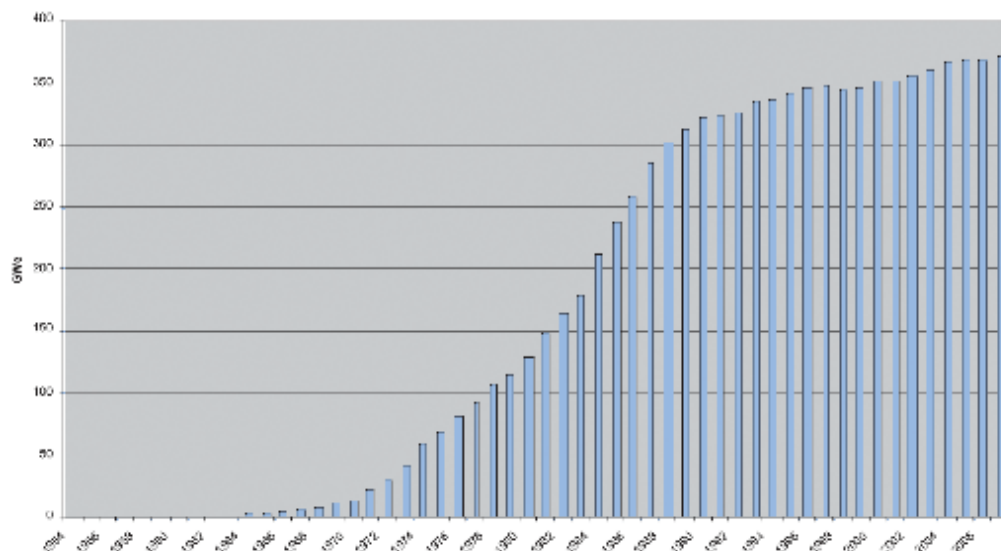
Les caractéristiques principales des filières électronucléaires sont rappelées dans le tableau ci-dessous.

Caractéristiques principales des filières électronucléaires

FILIÈRES REGROUPÉES reactor type groups	FILIÈRE type	CALOPORTEUR coolant		MODÉRATEUR moderator	COMBUSTIBLE fuel
GRAPHITE-GAZ gas-graphite	AGR	CO ₂	ADVANCED GAS COOLED	GRAPHITE	UO ₂ ENRICH enriched UO ₂ U NATUREL natural U UO ₂ , UC ₂ , ThO ₂ ...
	MGUNGG	CO ₂	MAGNOX GAS COOLED		
	HTR (GT-MHR, PBMR)	He	HIGH TEMPERATURE		
EAU LOURDE heavy water	PHWR	EAU LOURDE heavy water	SOUS PRESSION pressurized	EAU LOURDE heavy water	UO ₂ NATUREL OU ENRICH natural or enriched UO ₂
EAU ORDINAIRE light water	BWR (ABWR)	EAU ORDINAIRE light water	BOUILLANTE boiling	EAU ORDINAIRE light water	UO ₂ ENRICH enriched UO ₂ OU UO ₂ ENRICH ET MOX or enriched UO ₂ and MOX
	PWR (APWR, WWER)	EAU ORDINAIRE light water	SOUS PRESSION pressurized		
NEUTRONS RAPIDES fast reactor	SURGENERATEUR breeder	SODIUM sodium			UO ₂ ENRICH-PuO ₂ enriched UO ₂ -PuO ₂
EAU-GRAPHITE water-graphite	RBMK (LWGR)	EAU ORDINAIRE light water	BOUILLANTE boiling	GRAPHITE	UO ₂ ENRICH enriched UO ₂
EAU ORDINAIRE-EAU LOURDE light water-heavy water	HWLWR (ATR)	EAU ORDINAIRE light water	BOUILLANTE boiling	EAU LOURDE heavy water	UO ₂ ENRICH-PuO ₂ enriched UO ₂ -PuO ₂

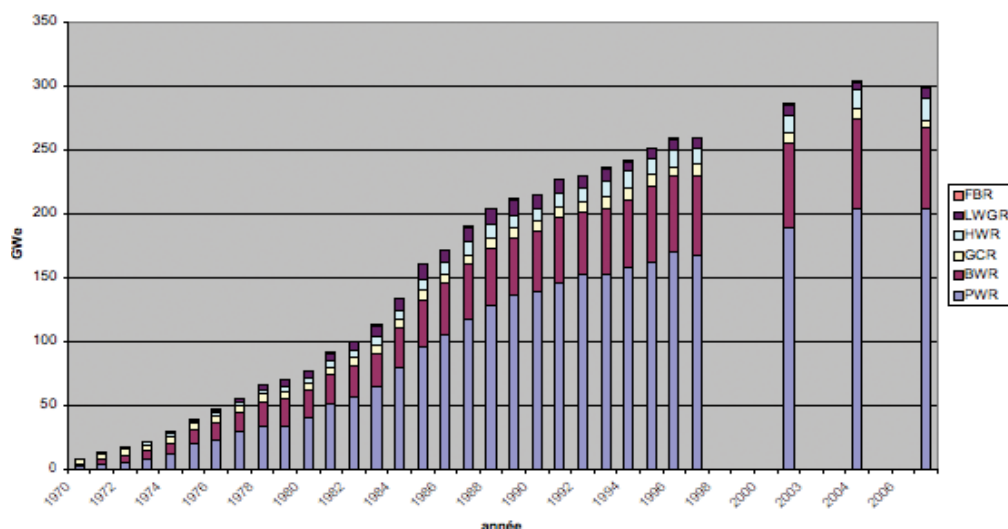
ABWR, APWR, GT-MHR, PBMR : MODELES AVANCES DE REACTEUR (Advanced reactor type).

L'évolution de la production nette mondiale d'électricité nucléaire de 1954 à 2007 est présentée sur le graphe ci-dessous. En 2007, la puissance nette totale des 439 réacteurs connectés au réseau s'élevait à environ 372 GWe. Elle s'est accrue de 0,9% par rapport à 2006, à comparer à une croissance annuelle mondiale moyenne du parc sur les dix dernières années de 0,7% par an.



L'évolution mondiale annuelle de la puissance nucléaire nette mondiale produite par type de réacteur est représentée sur le graphe ci-dessous [3].

Evolution annuelle de la puissance nette mondiale produite par type de réacteur



Sur les dernières années, les réacteurs des filières PWR, BWR, LWGR, HWR, GCR et FBR ont contribué en moyenne respectivement à environ 65, 20, 10, 5, 3 et 1 % de la production nette mondiale d'électricité nucléaire.

Pour tous les types de réacteurs de puissance, à l'exception des réacteurs à eau lourde, le mécanisme prédominant de production de tritium est la fission ternaire des isotopes fissiles de l'uranium et du plutonium dans le combustible¹. Les taux de production par fission sont similaires pour tous les types de réacteurs à neutrons thermiques et sont de l'ordre de 520 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹. Le taux de production dans les réacteurs à neutrons rapides est par contre un peu plus important, de l'ordre de 740 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹, compte tenu des rendements de fission ternaire différents pour les isotopes de l'U et du Pu en spectre de neutrons rapides [4][5][6]. Selon le type de réacteur et le type de gainage, une partie plus ou moins importante du tritium formé par fission dans le combustible peut diffuser dans le fluide primaire (eau, gaz ou sodium).

¹ Les fissions des noyaux d'uranium et de plutonium conduisent généralement à la formation de deux noyaux de produits de fission, de neutrons entretenant la réaction en chaîne et d'un dégagement d'énergie (de l'ordre de 200 MeV). Toutefois, dans un cas sur 10 000 environ, la fission conduit à la formation de trois noyaux, dont un noyau léger parmi lesquels le tritium (fission ternaire directe) et l'hélium-6 (noyau alpha) qui, par capture neutronique suivie d'une désintégration, conduit à la formation de tritium (fission ternaire indirecte). L'occurrence de la formation d'un noyau de tritium lors d'une fission ternaire est exprimée par un rendement de fission ternaire γ_T . Ce rendement est différent pour chaque noyau fissile.

² Le bore est introduit dans le circuit primaire sous forme d'acide borique pour le contrôle de la réactivité du réacteur. Le lithium est introduit dans le fluide primaire sous forme de lithine pour contrôler le pH et minimiser les risques de corrosion des structures internes du réacteur et les risques de dépôts de produits de corrosion sur le combustible (« crud »).

³ Réaction de capture $^{10}\text{B}(n, 2\alpha) \rightarrow ^3\text{H}$

Ainsi, contrairement aux réacteurs FBR fonctionnant au sodium, la contribution du combustible à la contamination en tritium du circuit primaire demeure très faible pour les réacteurs à eau légère et les réacteurs à eau lourde (cf. ci-après).

Les autres sources importantes de production de tritium dans les réacteurs nucléaires sont les réactions neutroniques avec certains isotopes du lithium et du bore présents en solution dans le fluide caloporteur primaire des réacteurs à eau ordinaire, avec le deutérium présent en concentration naturelle dans le fluide primaire de ces mêmes réacteurs ou contenu dans l'eau lourde des circuits modérateur et caloporteur des réacteurs à eau lourde ou encore avec le lithium présent en tant qu'impuretés dans le graphite modérateur des réacteurs graphite-gaz.

Ainsi, tout ou partie du tritium produit dans le circuit primaire des réacteurs nucléaires (source directe) ou diffusant dans ce circuit (source indirecte) se retrouve dans les effluents produits et est, selon le mode de gestion retenu, soit récupéré pour valorisation (cas des réacteurs à eau lourde), soit intégralement rejeté sous forme d'effluents liquides (cas des réacteurs PWR).

Les taux de production, les mécanismes d'émission et les rejets normalisés en tritium sont abordés ci-après de manière plus détaillée par type de réacteur.

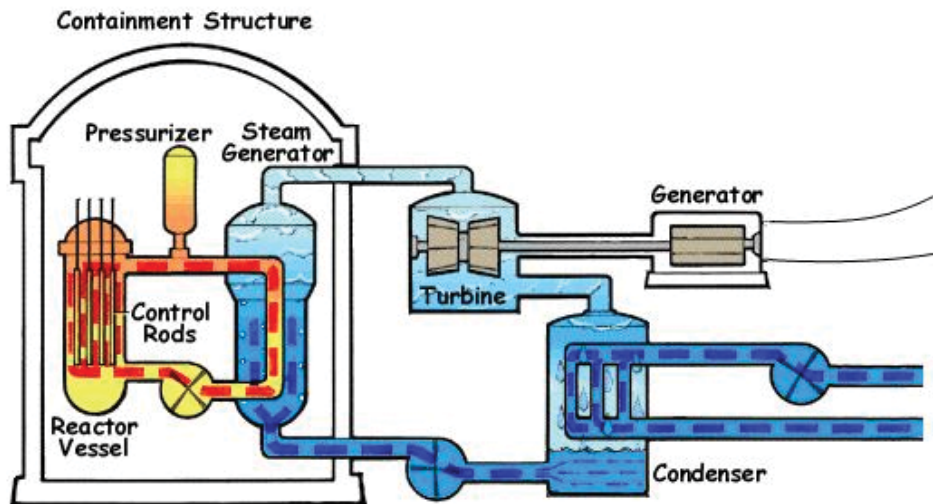
3.2.1.1 Les réacteurs à eau sous pression (PWR)

A la fin 2007, 265 réacteurs PWR de capacité nette totale de 243,5 GWe étaient connectés au réseau à travers le monde [3].

Dans un réacteur nucléaire à eau sous pression (PWR), l'eau joue à la fois le rôle de caloporteur et de modérateur. Le circuit primaire (300 °C, 150 bar) est séparé du circuit secondaire, ce dernier alimentant la turbine en vapeur.

Les données chiffrées et les modes de gestion du tritium décrits ci-après correspondent aux différents paliers des centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) d'EDF [7][8].

Dans ce type de réacteur, les sources de production de tritium ont deux origines :



- Les sources « directes » pour lesquelles le tritium est produit directement dans le fluide caloporteur par les réactions nucléaires sur les produits chimiques de conditionnement du circuit primaire (bore et lithium²), ainsi que sur le deutérium et les impuretés contenues dans l'eau du circuit primaire.

Les réactions d'activation neutronique sur le bore ^{10}B , et dans une moindre mesure sur le lithium ^6Li , constituent la source principale de production de tritium dans l'eau du circuit primaire. Le taux de production de tritium est ainsi de l'ordre de $37 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ [4][9], le bore 10 et le lithium 6 contribuant respectivement pour environ 85 et 15 % du tritium produit dans le fluide primaire (le lithium 7 et le deutérium contribuent pour moins de 1 %). Il faut noter que, selon la puissance du réacteur et le mode de gestion du combustible, la production de tritium, par cette voie, peut atteindre une valeur proche de $50 \text{ TBq.an}^{-1}.\text{tranche}^{-1}$ (cf. ci-après) ;

- Les sources « indirectes » pour lesquelles il existe des barrières physiques isolant le tritium du fluide caloporteur.

Elles ont pour origine les réactions de fission tertiaire se produisant au sein du combustible et les réactions d'activation neutronique sur le bore 10 présent dans les barres de contrôle, sur l'hélium de mise en pression des crayons combustibles et sur le béryllium des grappes sources secondaires. Par exemple, dans le cas particulier des barres de commande, la production de tritium est fonction de la durée d'irradiation (de l'ordre de $1\,700 \text{ GBq.GWe}^{-1}$ pour les paliers 1300 MWe et 1450 MWe d'EDF et pour une durée de vie des barres équivalente à 15 cycles d'irradiation), mais sa diffusion dans le circuit primaire reste très faible.

Les réactions de fission dans le combustible constituent la principale source de production de tritium (environ $520 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ - cf. ci-avant), mais celui-ci reste confiné dans le combustible grâce aux gainages en alliage de zirconium (zircaloy-4, M5) des crayons combustibles, le tritium ayant une très forte affinité pour le zirconium et diffusant très

faiblement à travers l'oxyde formé en surface de la gaine⁵ (taux de sortie d'environ 10^{-2} TBq par cycle, ce qui représente moins de 0,01 % du tritium rejeté par voie liquide par les centrales nucléaires). Ainsi, près de 50 % du tritium formé dans le combustible reste occlus dans les gaines, le reste restant piégé dans l'oxyde irradié. Toutefois, des études récentes semblent montrer que ce taux est vraisemblablement fonction des conditions d'irradiation du combustible en réacteur (cf. ci-après).

Le tritium peut néanmoins être relâché dans le fluide primaire avec du combustible en cas de ruptures de gaine (principalement liées à des défauts de fabrication, des phénomènes de fatigue vibratoire ou à la présence de corps étrangers). Selon EDF, cette contribution ne dépasse pas quelques TBq par an et par tranche (celle-ci est fonction du nombre de crayons défectueux et de leur taux de combustion), ce qui correspond à moins de 1 % de la quantité de tritium formée dans le combustible.

Par ailleurs, pour ce qui concerne le parc EDF, les réacteurs des paliers 1300 MWe et 1450 MWe comportent des grappes sources secondaires⁶ qui sont à l'origine d'une production supplémentaire de tritium dans le circuit primaire variant de 4 à 12 TBq par an et par tranche (soit environ $10 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$), correspondant à une production supplémentaire de 20 à 40 %, selon la durée d'irradiation des grappes.

Ainsi, c'est principalement le tritium produit dans l'eau du circuit primaire et essentiellement lié au conditionnement chimique de ce circuit qui se retrouve dans les effluents liquides et gazeux⁷, la quantité de tritium produite étant directement fonction de la quantité d'énergie fournie par le réacteur. Comme évoqué précédemment, celui-ci est rejeté dans l'environnement compte tenu de son faible impact radiologique et en l'absence de procédé industriel permettant de récupérer le tritium présent dans les effluents radioactifs liquides des centrales⁸, compte tenu notamment de leur très faible activité volumique et de leur volume très important (respectivement de l'ordre de 10^6 Bq.L^{-1} et de 10 000 à $12\,000 \text{ m}^3.\text{tranche}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne pour l'ensemble du parc).

⁴ Réaction de capture $^6\text{Li}(n, \alpha) \rightarrow ^3\text{H}$

⁵ Dans les conditions de pression et de température régnant dans le circuit primaire, une fraction du tritium formé dans le combustible diffuse dans la gaine, la couche d'oxyde interne (ZrO_2), formée à l'interface pastille-gaine, limitant son transfert dans l'épaisseur de la gaine et la couche d'oxyde externe limitant son relâchement dans le circuit primaire. Lors du déchargement du combustible du réacteur et de son entreposage en piscine de désactivation, le tritium piégé dans la gaine sous forme de gaz dissous en limite de solubilité précipite sous forme d'hydruure (ZrH_2).

⁶ Les grappes sources secondaires, constituées d'un mélange antimoine-béryllium fritté particulièrement tritigène sous flux neutronique, sont gainées par de l'acier inoxydable, cet acier étant très perméable au tritium dans les gammes de températures de fonctionnement normal du réacteur. Elles sont utilisées pour la surveillance de la réactivité du cœur en phase de rechargement du combustible et en phase sous-critique et servent à obtenir un taux de comptage minimal des « chaînes sources » de protection nucléaire du réacteur permettant de garantir en permanence leur disponibilité.

⁷ En production, le fluide primaire déchargé en cours de cycle pour ajuster ses caractéristiques chimiques ainsi que la puissance du réacteur lors des variations de charge est transféré du circuit primaire vers l'unité de traitement des effluents primaires (TEP) pour y subir un traitement par évaporation, les distillats obtenus contenant le tritium étant ensuite rejetés via les réservoirs recueillant les effluents radioactifs de l'îlot nucléaire (KER).

⁸ Les effluents tritiés rejetés des CNPE correspondent au contenu des réservoirs KER recueillant les distillats tritiés des unités de traitement des effluents primaires et des effluents usés.

⁹ Les arrêtés ministériels de prélèvement d'eau et de rejets spécifiques à chaque CNPE fixent des limites annuelles d'activité en tritium à respecter dans les rejets liquides et gazeux (respectivement entre 20 et $50 \text{ TBq.an}^{-1}.\text{tranche}^{-1}$ et entre 2 et $4 \text{ TBq.an}^{-1}.\text{tranche}^{-1}$ selon le type de gestion de combustible). Ces arrêtés fixent également, pour les rejets liquides et gazeux, des limites en tritium à respecter dans certains réservoirs de stockage avant rejet et dans le milieu récepteur après dispersion des effluents. Par ailleurs, les spécifications radiochimiques établissent des valeurs attendues et des limites de l'activité en tritium dans les différents circuits (circuit primaire, réservoirs de stockage intermédiaire et distillats...).

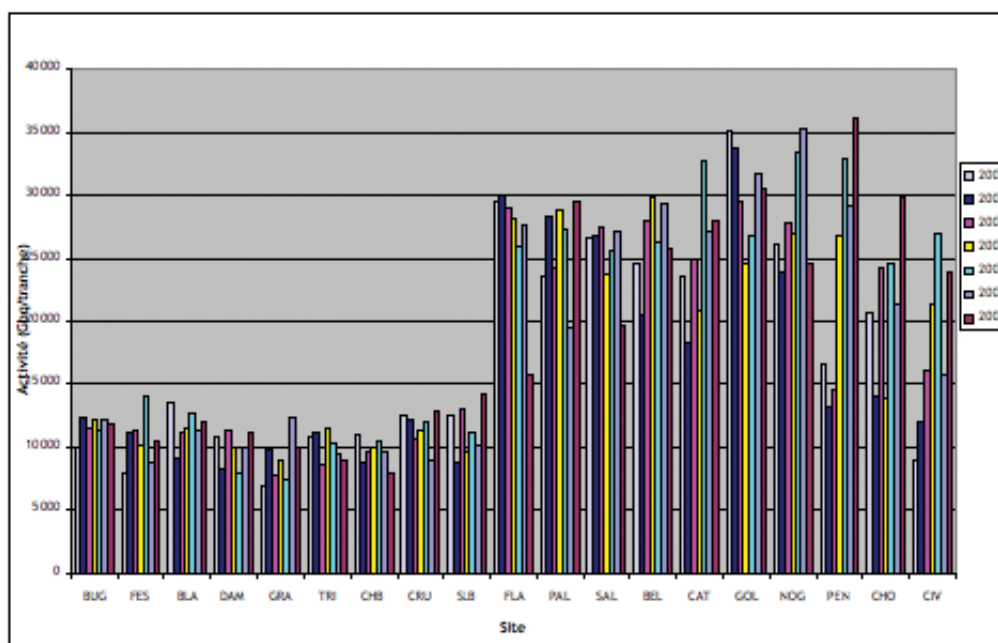
¹⁰ Les trois moyens principaux permettant de contrôler la réactivité du cœur (grappes de contrôle, poisons consommables et bore soluble) ne peuvent pas être utilisés séparément. La solution retenue consiste à introduire, dans le cœur, une partie de l'anti-réactivité nécessaire en début de cycle sous forme de poisons consommables (crayons combustibles gadolinés), de manière à limiter la concentration en bore initiale pour éviter les risques de cristallisation du bore et d'obtention d'un coefficient modérateur positif, les grappes de contrôle et le bore soluble étant ensuite utilisés tout au long du cycle pour maintenir le réacteur critique, notamment lors des variations de charge. De plus, dans certaines situations accidentelles, l'augmentation de la concentration en bore permet d'apporter un surplus d'anti-réactivité et l'injection de solution borique permet de maintenir l'inventaire en eau du circuit primaire.

¹¹ Le passage à une gestion de combustibles à haut taux de combustion nécessite, dans certains cas, de passer d'un renouvellement par quart de cœur à un renouvellement par tiers de cœur, ce qui conduit à augmenter le nombre d'assemblages combustibles neufs par recharge. Mais une fois le cycle à l'équilibre, le nombre d'assemblages introduits dans le cœur est inchangé.

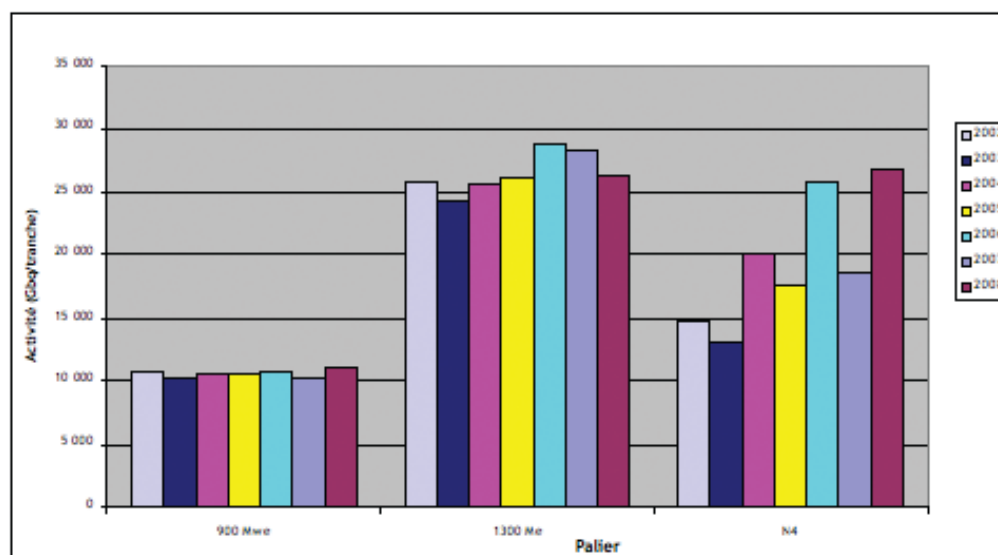
L'impact radiologique des rejets de tritium étant en général plus important par voie gazeuse que par voie liquide, les exploitants de centrales nucléaires font le plus souvent le choix de minimiser les rejets de tritium par voie gazeuse et, par voie de conséquence, de privilégier les rejets de tritium par voie liquide. Pour les centrales implantées en bord de mer ou en bord de fleuves à grand débit, le rapport des doses normées ($\mu\text{Sv.TBq}^{-1}$) peut être très important (facteur 100 voire plus) compte tenu des facteurs de dilution élevés liés aux courants marins ou aux débits fluviaux. Pour les centrales implantées en bord de rivières à faible débit, ce rapport calculé à partir des données disponibles est nettement plus réduit, mais ces chiffres sont à considérer avec prudence. En effet, les calculs effectués pour les rejets liquides adoptent parfois des hypothèses largement conservatives ; ainsi, le groupe de référence défini pour les rejets liquides est largement hypothétique car cumulant des habitudes de vie particulièrement défavorables (eau de rivière puisée à une distance très proche des exutoires de la centrale dans une zone de mauvais mélange, prise en compte d'un régime d'autarcie pour l'eau de boisson, l'arrosage des légumes et des fruits, l'abreuvement des animaux d'élevage...). En tout état de cause, l'impact dosimétrique annuel du tritium pour les groupes de référence des CNPE du parc d'EDF restent de l'ordre ou inférieur à $0,1 \mu\text{Sv}$ et ne représente qu'environ 10 % de l'impact dû à l'ensemble des radionucléides rejetés.

Ainsi, EDF a établi des règles de gestion du tritium communes à tous ses sites reposant essentiellement sur les deux principes suivants : d'une part privilégier les rejets de tritium sous forme liquide plutôt que sous forme gazeuse en regard de son impact dosimétrique, d'autre part rejeter le maximum et si possible tout le tritium produit dans l'année dans le circuit primaire, quelle qu'en soit l'origine, tout en s'assurant du respect des exigences des arrêtés de rejets⁹, et ne recycler des effluents primaires tritiés qu'en cas de difficultés liées aux conditions de rejet en période d'étiage ou de crue. Il est à noter que, si la production annuelle de tritium du CNPE est supérieure à la valeur limite autorisée de rejet de tritium dans les effluents liquides, l'exploitant est obligé d'entreposer momentanément des effluents tritiés, de la même façon que lors d'une période d'étiage. L'année suivante, il procède au rejet dans le respect des exigences réglementaires. Cette gestion du tritium s'appuie par conséquent sur un suivi rigoureux de la production et des rejets de tritium et sur une utilisation maximale des possibilités de rejets offertes par le cours d'eau. A cet égard, l'utilisation optimale des fenêtres de rejet est essentielle pour les centrales situées au bord de cours d'eau à faible débit.

Evolution des rejets liquides par site de tritium - 2002 à 2008



Evolution des rejets liquides par palier de tritium - 2002 à 2008

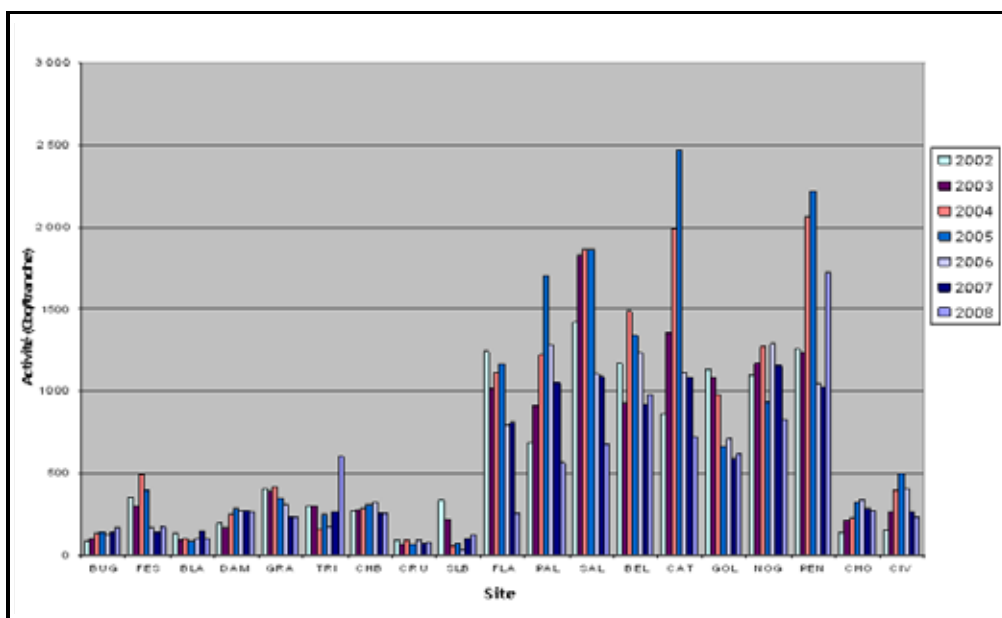


Il faut souligner qu'outre la stratégie de gestion consistant à favoriser au maximum les rejets de tritium par voie liquide, les possibilités de réduire ces rejets et par conséquent leur impact se limitent essentiellement, compte tenu de l'absence actuelle de procédé de traitement viable sur un plan technico-économique, à examiner les possibilités de limiter les sources de production de tritium dans le circuit primaire. Différents moyens tels que l'utilisation de bore sur-enrichi en bore 10 (qui permettrait de réduire la concentration en acide borique et en lithine dans le circuit primaire) ou de lithine sur-enrichie en lithium 7 (cet isotope contribuant beaucoup moins à la production de tritium que le lithium 6) peuvent être envisagés, mais le gain sur la production de tritium resterait néanmoins très faible (ces options ont été envisagées pour le réacteur EPR). Quant à la possibilité de supprimer le bore, celle-ci n'est pas envisageable de par la conception du cœur du réacteur¹⁰. Sa substitution par un autre produit neutrophage semble également très difficile de par le nombre de critères à respecter (neutronique, chimique, radiotoxicité...). Enfin, la suppression des grappes sources secondaires sur certains paliers et l'augmentation de la charge en gadolinium du combustible, représentée par le rapport entre le nombre d'assemblages neufs gadolinisés sur le nombre total d'assemblages neufs par recharge, pourraient également contribuer à réduire la production de tritium, mais ces différentes pistes doivent être encore explorées et quantifiées.

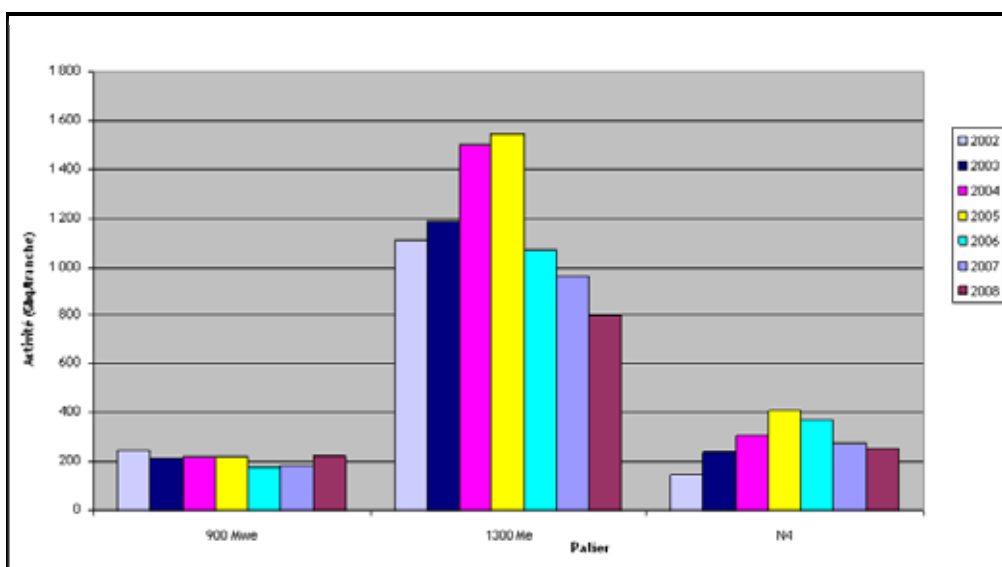
Les rejets moyens de tritium par tranche sont variables suivant le palier de puissance du réacteur, la production de tritium étant, comme indiqué précédemment, liée à la quantité d'énergie produite, mais également à la durée des cycles de fonctionnement (de 12 à 18 mois selon les tranches) et au taux d'enrichissement en ^{235}U du combustible utilisé. En particulier, l'allongement des campagnes nécessitant d'augmenter le taux d'enrichissement du combustible (de 3,4 % à 5 % en ^{235}U au maximum suivant les gestions du combustible), ainsi que le nombre d'assemblages neufs lors des rechargements¹¹, conduit à augmenter la concentration en bore soluble dans le circuit primaire, afin de compenser l'excès de réactivité initiale, et à ajuster la teneur en lithium en début de cycle. Ces évolutions ont pour conséquence une augmentation notable de la production de tritium et ce, malgré l'utilisation de combustibles au gadolinium (poisons consommables).

Les évolutions des rejets liquides et gazeux de tritium par tranche pour l'ensemble des sites du parc EDF puis par palier sont reportées sur les quatre graphes ci-après pour la période 2002-2008 (cf. rapports nucléaire et environnement d'EDF).

Evolution des rejets gazeux par site de tritium 2002 à 2008



Evolution des rejets gazeux par palier de tritium - 2002 à 2008



En moyenne par réacteur, les rejets liquides annuels de tritium sont d'environ 10 TBq pour le palier 900 MWe avec un maximum de 15 TBq (les gestions MOX actuelles du palier 900 MWe n'ont que peu d'influence sur la production de tritium compte tenu du fait que la concentration en bore et le mode d'exploitation d'un cœur UO_2 et d'un cœur MOX sont sensiblement identiques). Pour le palier 1300 MWe, ces rejets liquides ont sensiblement augmenté depuis la mise en œuvre, en 1996-1997, de la gestion de combustible GEMMES utilisant des combustibles plus enrichis (4 % ^{235}U au lieu de 3,1 % initialement) et produisant donc plus de tritium (augmentation de la teneur en bore dans le circuit primaire). Ces rejets sont passés en moyenne par réacteur de 15 TBq.an⁻¹ en 1996 à 25 TBq.an⁻¹ ces dernières années (équilibre atteint en 2001). Pour le palier 1450 MWe, les rejets de tritium atteignent leur état d'équilibre avec une moyenne d'environ 20 TBq.an⁻¹.

L'activité rejetée par voie gazeuse est d'environ de 0,3 TBq par tranche pour les paliers 900 MWe et 1450 MWe et de 1,2 TBq par tranche pour le palier 1300 MWe, ces effluents provenant principalement de l'évaporation des piscines BK et des piscines BR lors des arrêts pour rechargement, ainsi que des événements des bâches intermédiaires TEP d'effluents tritiés. Ces rejets pourraient toutefois être réduits sur le palier 1300 MWe en limitant les débits de ventilation des bâches intermédiaires. Ainsi, le retour d'expérience montre que près de 98 % du tritium produit en 2007 sur l'ensemble du parc EDF ont été rejetés sous forme liquide.

Par ailleurs, il convient de souligner que l'augmentation des rejets liquides de tritium émis par les réacteurs de 1300 MWe ne peut être imputée à la seule modification de la gestion du combustible puisque cette augmentation est également liée au fait que l'exploitant privilégie dorénavant les rejets de tritium sous forme liquide plutôt que sous forme gazeuse, cette politique ayant été initiée plus rapidement pour le palier 1300 MWe que pour les autres paliers. De façon générale, la stratégie de gestion des effluents primaires est propre à chaque CNPE du fait :

- de la diversité des contraintes environnementales pouvant être rencontrées (étiage, crue, plage de débit autorisant les rejets) ;
- de l'impact des stratégies de gestion précédentes (historique), celles-ci ayant pu conduire à une augmentation progressive de l'activité du tritium dans le circuit primaire et les circuits connexes jusqu'à des valeurs proches des limites spécifiées, obligeant à déconcentrer le tritium dans ces circuits, à le déstocker et finalement à augmenter les rejets liquides de tritium ;
- de l'existence de problématiques spécifiques propres à chaque CNPE ;
- des disparités quant aux limites fixées pour le paramètre tritium dans les arrêtés d'autorisation de rejets.

Enfin, pour l'ensemble des 58 tranches du parc d'EDF, les rejets normalisés de tritium par voies liquide et gazeuse en 2007 sont respectivement de 20 et 0,6 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne et recoupent les valeurs fournies par l'UNSCEAR pour la période 1975-1997 [1][2][10][11], pour l'ensemble des réacteurs PWR en exploitation dans le monde.

A cet égard, il faut rappeler que, pour ce qui concerne le parc EDF, les méthodes de comptabilisation des rejets radioactifs, et notamment des rejets de tritium, ont évolué depuis 2002, ce qui rend délicate toute comparaison avec les années antérieures.

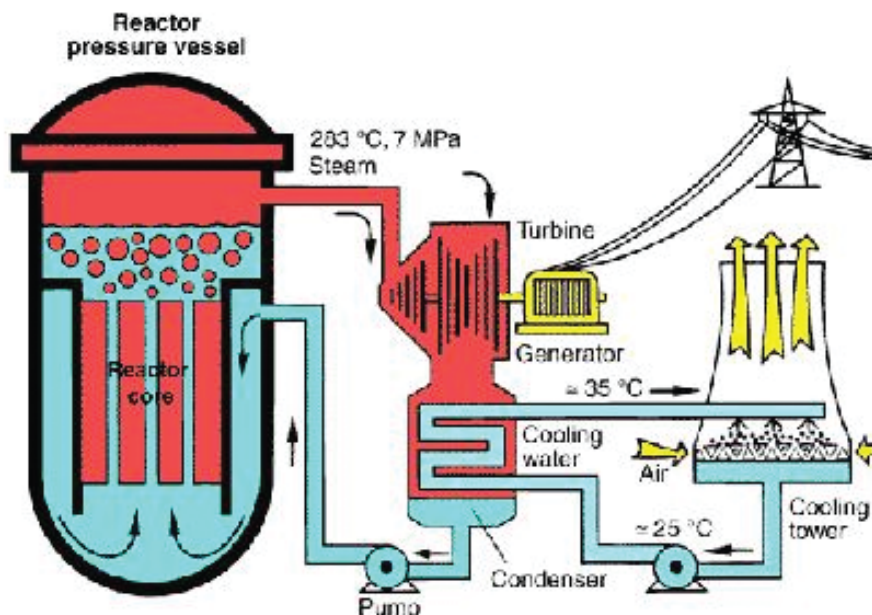
Sur la période 1975-1997, les valeurs de rejet fournies par l'UNSCEAR ont diminué de manière constante, respectivement de 38 à 19 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et de 7,8 à 2,3 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ respectivement pour les voies liquide et gazeuse, cette évolution étant liée principalement à une meilleure gestion

de l'exploitation et de la maintenance réalisée en arrêt de tranche, mais également à une évolution des méthodes de comptabilisation et des performances de la métrologie.

3|2|1|2| Les réacteurs à eau bouillante (BWR)

A la fin 2007, 94 réacteurs BWR de puissance unitaire variant de 150 à 1350 MWe et de capacité nette totale de 85,3 GWe, étaient connectés au réseau à travers le monde [3].

Schéma simplifié d'un réacteur BWR



Les principales caractéristiques d'un réacteur BWR et les principales différences par rapport à un réacteur PWR sont rappelées ci-après :

- présence d'un seul circuit, l'eau légère étant portée à l'ébullition dans le cœur et la vapeur produite allant directement dans la turbine (280 °C, 70 bar) ;
- nécessité d'augmenter le volume du cœur, de puissance spécifique plus faible, la densité de l'eau, en partie sous forme vapeur, étant notablement plus faible¹² ;
- nécessité de séparer mécaniquement l'eau et la vapeur (un séparateur est implanté en haut de la cuve) et de renvoyer directement la phase liquide séparée reprise par des pompes dans le cœur du réacteur (le taux de vide est nul au bas du cœur et atteint environ 70 % au haut de ce dernier) ;
- nécessité d'enfermer les assemblages combustibles dans des boîtiers destinés à canaliser l'eau de refroidissement, maintenir une circulation axiale assurant la stabilité du cœur et faciliter leur maintenance, les barres de contrôle cruciformes étant insérées entre ces boîtiers ;
- existence d'un fort couplage entre thermohydraulique et neutronique ayant pour conséquence une grande stabilité radiale de flux, mais un fort déséquilibre axial de puissance (usure plus rapide du combustible dans la partie basse du cœur) ; les solutions successivement adoptées pour limiter la bosse de puissance en partie basse, réduire le déséquilibre axial et assurer une partie de la compensation à long terme ont été les suivantes :
 - insertion de barres de commande par le bas de la cuve où l'absence de bulles de vapeur crée un excès de réactivité (utilisation de gadolinium puis de bore et de hafnium) ;
 - introduction de l'étagement axial du poison consommable (Gd) dans les crayons combustibles et enrichissement axial des crayons combustibles plus important en partie haute du cœur¹³.

¹² La cause en est la neutronique : au même volume de combustible et, approximativement, au même nombre de crayons et à la même puissance que pour un réacteur PWR, il faut associer un volume d'eau plus important puisque celle-ci est, en moyenne, moins dense du fait de la présence de bulles de vapeur, ce qui diminue ses qualités modératrices.

¹³ Lorsque les éléments absorbants sont retirés, une lame d'eau relativement importante apparaît entre les assemblages. Cette eau, qui n'est pas en contact direct avec le combustible, n'est pas vaporisée et va donc induire une remontée de réactivité qui pourrait conduire à un pic de puissance au niveau des crayons voisins. C'est pour cette raison qu'un zonage d'enrichissement est mis en place et que les emplacements des crayons consommables sont optimisés.

3 | 2 | 1 | 3 | Les réacteurs à eau lourde sous pression (PHWR)

A la fin 2007, 44 réacteurs de type PHWR (puissance unitaire variant de 90 à 880 MWe), de capacité nette totale de 22,4 GWe et dont plus de la moitié est fournie par le Canada, étaient connectés au réseau à travers le monde [3].

Il faut noter que l'utilisation de poison soluble (acide borique) en tant que modérateur n'est pas envisageable dans les réacteurs BWR. Celui-ci, restant dans la phase liquide, donnerait lieu à des dépôts dans la partie supérieure du cœur et pourrait entraîner des problèmes de stabilité du fait de l'écoulement diphasique dans les canaux du cœur. A titre d'exemple, dans l'éventualité d'une augmentation de puissance, l'ébullition accrue se traduirait par une diminution de la quantité de poison présente dans le cœur et une augmentation de sa réactivité. Ainsi, la solution consistant à éliminer progressivement le bore soluble dans l'eau du circuit primaire pour compenser l'usure à long terme du combustible n'étant pas applicable dans le cas des réacteurs BWR, la solution retenue a consisté à augmenter considérablement l'antiréactivité totale des barres de commande par rapport à un réacteur PWR (de l'ordre de 150 barres pour 600 assemblages).

Le bore est cependant utilisé dans certains systèmes de secours des réacteurs BWR, notamment en cas d'accident de perte de réfrigérant primaire. Enfin, la présence de bore dans l'eau du circuit caloporteur conduirait à la production de tritium qu'il conviendrait de prendre en compte, notamment en cas de fuite de la turbine, qui se traduirait par un relâchement d'effluents gazeux radioactifs en salle des machines¹⁴.

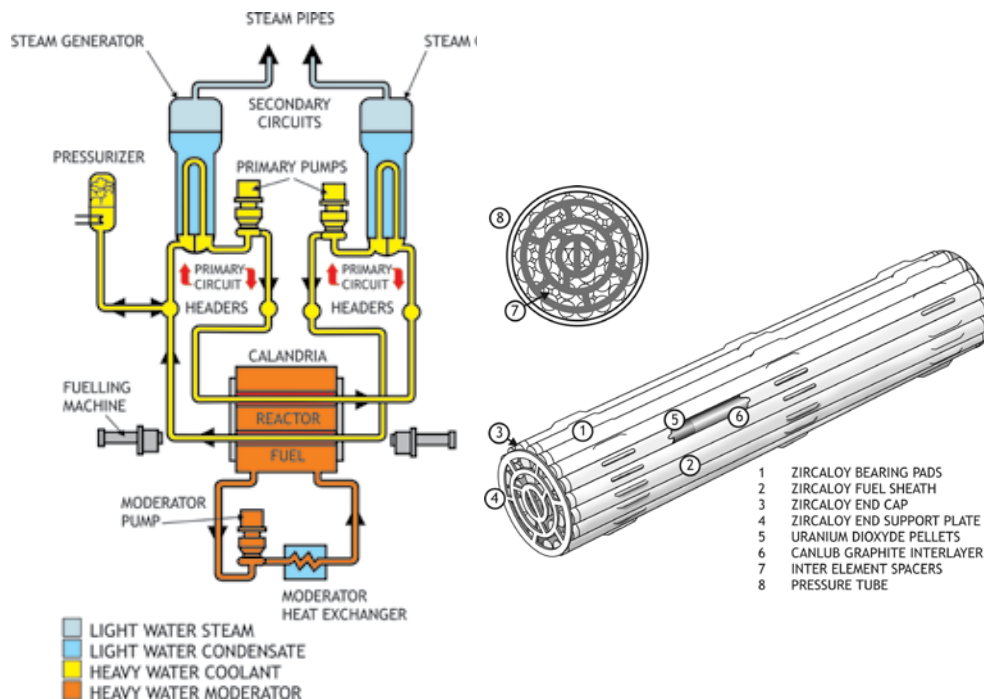
Dans les réacteurs BWR, les sources de production de tritium sont les suivantes [4][5][6] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible (de l'ordre de 520 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹). De manière identique aux réacteurs PWR, une partie du tritium produit dans le combustible diffuse dans les gaines (zircaloy-2), celui-ci étant arrêté par la couche d'oxyde externe (taux de sortie dans le circuit caloporteur extrêmement faible) ; à cet égard, les travaux de Kunz [12] et Kearns [13] ont montré que la nature des alliages de zirconium (zircaloy-2 et zircaloy-4) n'avait pas d'influence significative sur la mobilité du tritium et le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans les gaines ;
- les défauts de gainage (moins de 1 % de la quantité de tritium formée dans le combustible) ;
- l'activation neutronique du deutérium présent naturellement dans l'eau du circuit primaire (production très faible) ;
- la production de tritium dans les barres de commande cruciformes borées et gainées en acier inoxydable, plus importante que dans les autres types de réacteurs, celui-ci diffusant très faiblement dans le circuit primaire. De l'ordre de 1 850 TBq.GWe⁻¹ sont présents dans ces barres en fin de vie.

Pour l'ensemble des réacteurs BWR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR pour la période 1975-1997 [1][2][10][11], varient respectivement de 2,1 à 0,9 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et de 3,4 à 0,9 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹, ces valeurs diminuant depuis 1975 pour atteindre un palier à partir de 1990. A l'heure actuelle, il peut être retenue, en tant qu'ordre de grandeur, une valeur de rejet de tritium de l'ordre de 1 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ à la fois pour la voie liquide et la voie gazeuse.

Il faut souligner que, compte tenu de l'absence d'acide borique dans le circuit caloporteur, l'activité en tritium rejetée sous forme d'effluents liquides par les réacteurs BWR est environ 20 fois moins importante que celle correspondant aux réacteurs PWR.

Schémas simplifiés d'un réacteur et d'un assemblage combustible de type CANDU



Les principales caractéristiques d'un réacteur à eau lourde de type CANDU (CANAdian Deutérium natural Uranium reactors) sont rappelées ci-après :

- l'eau lourde est utilisée à la fois comme caloporteur et modérateur, mais dans des conditions physiques et thermodynamiques différentes ;
- le caloporteur (circuit primaire) et le modérateur sont séparés physiquement, contrairement aux réacteurs PWR et BWR ;
- l'eau lourde de refroidissement primaire sous pression (11 bar, 300 °C) circule dans des tubes de force horizontaux¹⁵ en alliage zirconium-niobium, ou canaux, contenant les assemblages combustibles, puis passent dans des générateurs de vapeur analogues à ceux des réacteurs PWR, le circuit secondaire étant également analogue à celui des PWR ;
- le circuit modérateur est maintenu à moins de 100 °C et n'est pas sous pression ; compte tenu du rapport de modulation élevé, le volume de modérateur est beaucoup plus important que dans un réacteur PWR ;
- le combustible est à base d'oxyde d'uranium naturel non enrichi, le matériau de gainage étant le zircaloy ; les taux de combustion atteints sont de l'ordre de 7 500 MWj.t⁻¹ en moyenne ; un léger enrichissement permet d'augmenter les durées de vie des éléments combustibles ;
- le renouvellement du combustible est effectué en marche pour éviter d'arrêter trop fréquemment le réacteur ;
- la pénétration des barres de commande dans le cœur s'effectue par le haut, perpendiculairement aux canaux.

¹⁴ L'eau du circuit primaire, traversant le cœur, est déjà légèrement radioactive à cause de la présence de quelques produits de corrosion susceptibles de s'activer sous flux neutronique et, surtout, de la formation d'azote 16, émetteur gamma dur, par réaction (n, p) sur l'oxygène de l'eau.

¹⁵ Les tubes de force sont des tubes susceptibles de résister à une température et une pression élevées. Plusieurs centaines de tubes traversent la cuve (dite calandre) contenant l'eau lourde modératrice.

Dans les réacteurs de type PHWR, les sources de production de tritium sont les suivantes [4][6][9] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible (de l'ordre de 520 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹).
Une partie du tritium diffuse dans les gaines en zircaloy, le taux d'inclusion étant a priori inférieur à celui des réacteurs LWR et le taux de sortie dans le circuit caloporteur restant extrêmement faible ;
- des défauts de gainage (moins de 1 % de la quantité de tritium formée dans le combustible diffusant dans le caloporteur) ;
- l'activation neutronique du deutérium de l'eau lourde présent dans le caloporteur du circuit primaire (de l'ordre de 1850 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹) et dans le modérateur (de l'ordre de 51 800 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹), ces quantités de tritium produites étant directement proportionnelles au flux neutronique et à la durée d'irradiation.
La teneur en eau lourde et le flux de neutrons thermiques étant plus faibles dans les canaux de refroidissement que dans le circuit du modérateur, le taux de production de tritium est par conséquent moins élevé dans le fluide caloporteur (facteur de l'ordre de 40 entre les activités volumiques en tritium dans le caloporteur et le modérateur au bout de 40 ans de fonctionnement) ;
- la formation par activation neutronique du bore (0,25 ppm) et du lithium présent dans le caloporteur du circuit primaire, la quantité de tritium produite étant toutefois très faible (la teneur en bore de 0,25 ppm est à comparer avec les 1100 ppm présents dans le circuit primaire d'un PWR à pleine puissance en début de cycle)

La production totale de tritium dans le modérateur et le caloporteur des réacteurs PHWR, de l'ordre de 90 000 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ au maximum, est par conséquent beaucoup plus importante (facteur supérieur à 2000) que la quantité formée dans le circuit primaire des réacteurs PWR (37 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹), la quantité de tritium accumulée dans l'eau lourde en fin de vie du réacteur étant de l'ordre de 7,4.10⁵ TBq.GWe⁻¹.

Pour ce qui concerne le comportement du tritium dans un réacteur à eau lourde, il faut souligner que les fuites possibles d'eau lourde (maximum 1 à 2 % par an), au niveau des circuits du caloporteur et du modérateur et des équipements auxiliaires (vannes, brides...), nécessitent la mise en place, d'une part de systèmes de surveillance et de récupération de l'eau lourde en circuit fermé pour recyclage, d'autre part d'un confinement adéquat (sécheurs d'air, ventilation, cascades de dépression...), afin de minimiser les risques de contamination du bâtiment réacteur et les rejets de tritium sous forme liquide et gazeuse dans l'environnement.

Un moyen complémentaire permettant de limiter les rejets liquide et gazeux de tritium est la mise en place de systèmes de détritiation permettant de traiter une partie de l'eau lourde présente dans les circuits du caloporteur et du modérateur avant recyclage dans le réacteur, le tritium étant récupéré sous forme gazeuse comme sous-produit économiquement valorisable (exemple de Darlington). La mise en œuvre de ces procédés de séparation, facilitée par le fait que l'activité en tritium des flux à traiter est très importante (de l'ordre de 10¹¹ à 10¹² Bq.L⁻¹) et beaucoup plus élevée que dans le cas des réacteurs PWR (environ 10⁶ Bq.L⁻¹), introduit toutefois des risques supplémentaires de fuites de tritium en exploitation qu'il convient de gérer.

Par ailleurs, il faut noter que, bien que la quantité de tritium produite dans le caloporteur représente moins de 3 % de celle produite dans le modérateur, les conséquences, en termes d'impact dosimétrique sur les travailleurs, des rejets en tritium issus du circuit primaire, compte tenu des conditions de température et de pression régnant dans ce circuit (11 bar, 300 °C), sont à peu près du même niveau que les conséquences des rejets issus des circuits contenant le modérateur. Pour cette raison, le maintien de l'intégrité de la séparation physique entre ces deux circuits s'avère essentiel pour éviter les transferts de contamination et maintenir en particulier l'activité massique en tritium du caloporteur

à une valeur inférieure à 37 GBq.kg⁻¹, celle du modérateur avoisinant les 1 500 GBq.kg⁻¹ (le double en absence de système de détritiation ou de renouvellement d'une partie de l'eau lourde tritiée).

Pour l'ensemble des réacteurs PHWR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR [1][2][10][11] pour la période 1975-1997, varient respectivement de 290 à 490 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ et de 690 à 330 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne, les rejets atmosphériques diminuant depuis les années 1980 (mise en place progressive de systèmes de confinement et de détritiation complémentaires) et les rejets liquides augmentant progressivement en fonction de la puissance totale nette installée. Des données récentes [14] indiquent que les rejets de tritium par voies liquide et gazeuse durant l'année 2006, pour l'ensemble des réacteurs CANDU exploités au Canada, sont respectivement de l'ordre de 1 600 et 2 100 TBq.an⁻¹ pour une production nette d'électricité nucléaire de l'ordre de 10 GWe.an, soit des rejets de l'ordre de 160 et 210 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne.

Pour toutes les raisons évoquées ci-avant et principalement l'utilisation d'eau lourde en grandes quantités dans le caloporteur et le modérateur, les rejets en tritium des réacteurs PHWR sont donc beaucoup plus importants que ceux issus des réacteurs à eau légère (PWR et BWR).

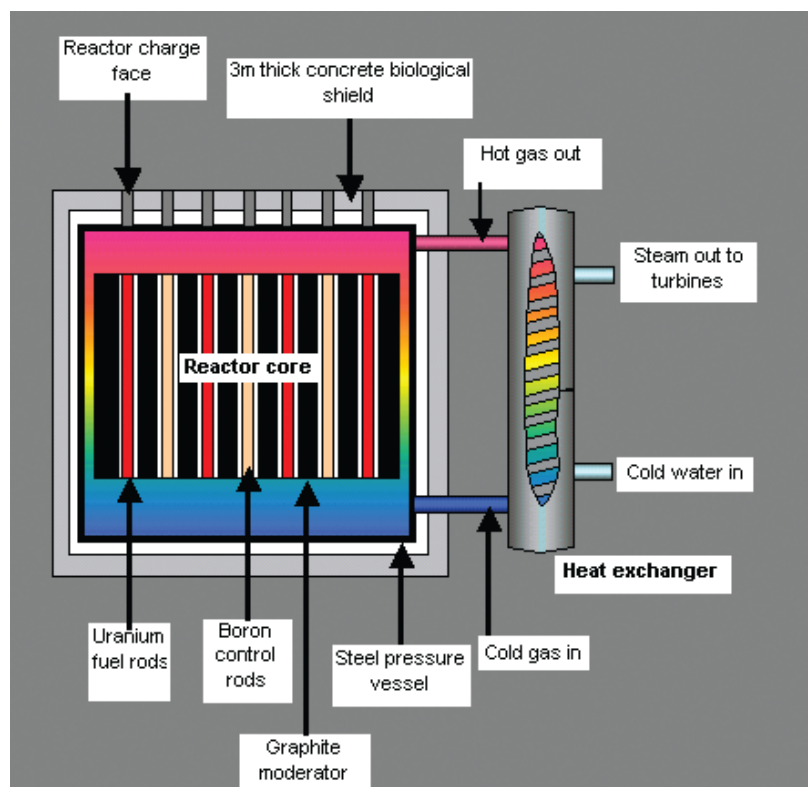
3|2|1|4| Les réacteurs graphite-gaz (GCR)

A la fin 2007, 18 réacteurs de la filière graphite-gaz de types AGR et MAGNOX (puissance unitaire variant de 217 à 625 MWe), de capacité nette totale de 9 GWe, étaient connectés au réseau au Royaume-Uni [3].

Les réacteurs de type MAGNOX à modérateur graphite et caloporteur CO₂ constituent la première génération des réacteurs britanniques à caloporteur gaz (concept identique à celui des réacteurs graphite-gaz français du type UNGG). Seules deux unités étaient encore en fonctionnement en 2007. Leurs principales caractéristiques sont rappelées ci-après :

- utilisation de combustibles métalliques à base d'uranium naturel gainés en magnésium ;
- combustibles irradiés en moyenne à 6 000 MWj/t ;
- températures de sortie de gaz (de l'ordre de 360-400 °C) et rendement du cœur limité ;
- échangeurs de chaleur implantés à l'extérieur de la cuve en acier.

Schéma simplifié d'un réacteur MAGNOX



Les réacteurs de type AGR (Advanced Gas-cooled Reactor) constituent la seconde génération des réacteurs britanniques à caloporteur gaz et a été développée à partir du concept du réacteur MAGNOX. Les principales caractéristiques sont rappelées ci-après :

- réacteurs à modérateur graphite et à caloporteur CO_2 ;
- crayons combustibles constitués d'oxyde d'uranium enrichi (2,5 à 3,5 % en ^{235}U), gainés en acier inoxydable, disposés en grappes empilées et entourées de manchons en graphite ;
- combustible irradié jusqu'à $27\,000\text{ MWj.t}^{-1}$;
- rendement thermique (de l'ordre de 40 %) plus élevé que dans le cas des réacteurs MAGNOX ;
- chargement et déchargement du réacteur en ligne ;
- barres de commande (bore-acier) insérées dans la structure graphite par le haut du réacteur ;
- caloporteur sous pression à 650°C en sortie de cœur améliorant le transfert de chaleur, mais nécessitant l'utilisation d'un caisson en pression en béton isolé thermiquement ;
- recirculation du CO_2 à l'intérieur du cœur afin de le maintenir à une température suffisamment basse pour éviter l'oxydation du graphite ;
- échangeurs de chaleur implantés dans la cuve en acier et non à l'extérieur comme dans le cas des réacteurs MAGNOX.

Enfin, la filière française des réacteurs de technologie UNGG (Uranium Naturel-Graphite-Gaz) a été développée conjointement par le CEA et EDF dans les années 1950 jusqu'à son abandon en 1969 au profit de la filière des réacteurs à eau sous pression (PWR). Neuf réacteurs électrogènes ont été construits et exploités sur les sites de Chinon, Saint-Laurent-des-Eaux, Bugey et Marcoule pendant cette période et sont aujourd'hui en partie démantelés. Leur conception était très proche de celle des réacteurs de type MAGNOX (modérateur graphite et caloporteur CO_2 , combustible métallique à uranium naturel gainé en magnésium et logé dans des canaux aménagés dans l'empilement de graphite, échangeurs de chaleur intégrés ou non au caisson du réacteur, circulation du CO_2 assurée par des turbosoufflantes).

Dans les réacteurs de type graphite-gaz, les sources de production de tritium sont les suivantes [4][6] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible (de l'ordre de $520\text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$). Dans le cas des réacteurs AGR, une partie du tritium produit dans le combustible diffuse dans le caloporteur CO_2 au travers de la gaine en acier inoxydable (taux inférieur à 30 %) ; le relâchement de tritium en cas de crayon combustible fuyard reste très faible car le rechargement du réacteur est réalisé en continu. Dans le cas des réacteurs MAGNOX, très peu de tritium diffuse du combustible dans le caloporteur (combustible métallique gainé en magnésium) ;
- la formation par activation neutronique du lithium présent en tant qu'impureté dans le graphite modérateur (teneur fonction de la pureté du graphite et de la durée d'irradiation), le taux de production de tritium variant de 0 à $185\text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et la diffusion dans le caloporteur d'une faible partie du tritium produit, due à la corrosion du graphite par le CO_2 ; la quantité de tritium accumulée dans le graphite en fin de vie du réacteur est de l'ordre de 37 TBq.GWe^{-1} ;
- l'activation neutronique du deutérium présent dans la vapeur d'eau du caloporteur (taux de production très faible) ; il faut noter que, dans le cas des réacteurs MAGNOX et à la différence des réacteurs AGR, le CO_2 est traité en continu dans des déshumidificateurs, le tritium se retrouvant dans les effluents liquides produits, sous forme d'eau tritiée.

Pour l'ensemble des réacteurs de type graphite-gaz dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR pour la période 1975-1997 [1][2][10][11], varient respectivement de 25 à $280\text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et de 8,1 à $3,9\text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne, les rejets atmosphériques diminuant progressivement depuis les années 1980

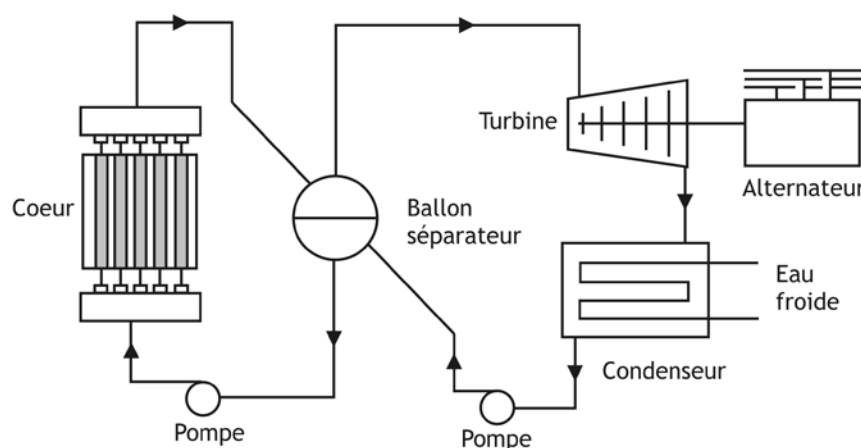
(mise en place de déshumidificateurs pour récupérer l'eau tritiée présente dans le caloporteur gaz) et les rejets liquides augmentant progressivement en fonction du démarrage des réacteurs AGR (davantage de tritium diffusant du combustible gainé en acier inoxydable dans le caloporteur gaz). Ces rejets semblent avoir atteint un palier depuis les années 1995. Il faut enfin noter que les rejets normalisés de tritium sous forme liquide des réacteurs AGR sont actuellement assez proches de ceux émis par les réacteurs à eau lourde et, par conséquent, beaucoup plus importants que ceux émis par les réacteurs PWR.

3|2|1|5| Les réacteurs eau-graphite (LWGR)

A la fin 2007, 16 réacteurs de la filière eau-graphite (LWGR) du type RBMK (puissance unitaire variant de 11 à 925 MWe), principalement localisés en Russie, de capacité nette totale de $11,4\text{ GWe}$, étaient connectés au réseau [3]. D'autres réacteurs RBMK ont été arrêtés à la suite de l'accident de Tchernobyl.

Les réacteurs RBMK sont des réacteurs à tubes de force refroidis à l'eau bouillante (70 bar) et modérés au graphite. L'eau et la vapeur sont séparées dans des ballons séparateurs extérieurs au réacteur et la vapeur est envoyée à la turbine. Ils utilisent un combustible constitué d'oxyde d'uranium faiblement enrichi (de l'ordre de 2 %) et sont dotés d'un système de renouvellement du combustible en marche. Les principaux défauts de conception concernent les risques d'augmentation immédiate

Schéma simplifié d'un réacteur de type RBMK



de puissance en cas d'assèchement des tubes de force lié à la présence d'une trop grande quantité de modérateur (eau et graphite), la prise en compte insuffisante des risques de surpression à l'intérieur du bloc réacteur en cas de rupture multiple des tubes de force et l'absence d'enceinte de confinement autour du bloc réacteur capable de résister aux conditions accidentelles.

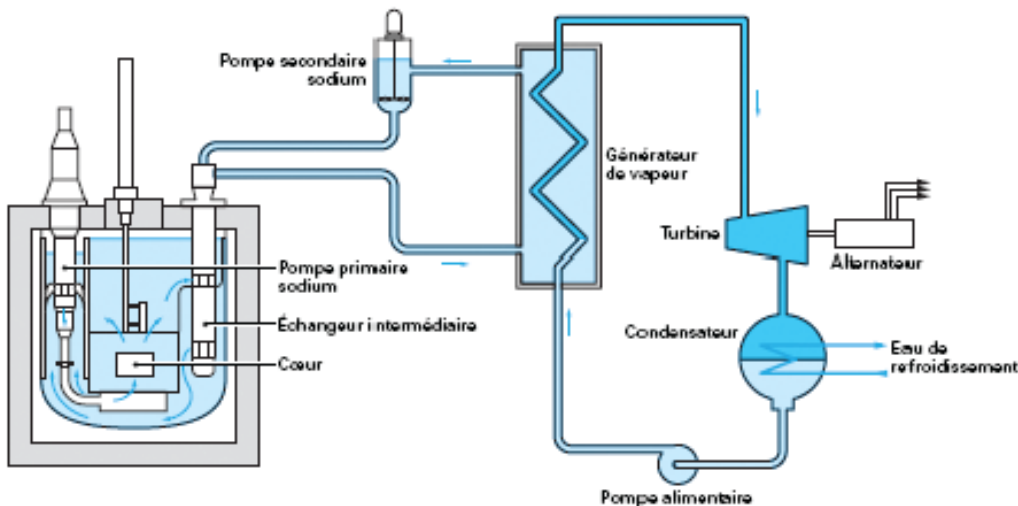
Pour ce qui concerne les sources de production et le comportement du tritium dans les réacteurs du type RBMK, peu d'informations sont disponibles. Le tritium se forme principalement par fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible, par activation du lithium présent en tant qu'impureté dans le graphite modérateur et par activation neutronique du deutérium présent dans le fluide caloporteur (eau).

Pour l'ensemble des réacteurs de type LWGR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR [1][2][10][11], sont respectivement de l'ordre $11\text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et de $26\text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ en moyenne (valeurs calculées). Le niveau des rejets normalisés de tritium dans les effluents liquides est par conséquent relativement proche de ceux des réacteurs PWR.

Cinq réacteurs de la filière à neutrons rapides (FBR) sont en exploitation à travers le monde (réacteurs BOR 60, BN 600, JOYO, MONJU et FBTR), leurs puissances unitaires variant de 15 MWe (FBTR) à 1 400 MWe (JOYO). Certains sont à l'arrêt suite à des incidents de fonctionnement. Le réacteur PHENIX est actuellement en cours d'arrêt définitif, le réacteur SUPERPHENIX de 1 200 MWe ayant été arrêté en 1997. En 2007, seuls les réacteurs PHENIX et BN 600, de puissances nettes respectivement égales à 130 et 560 MWe, étaient connectés au réseau [3].

Toutes ces installations utilisent le sodium comme fluide primaire, celui-ci cédant sa chaleur à un circuit intermédiaire utilisant également du sodium, lui-même cédant sa chaleur au circuit eau/vapeur. Deux variantes ont vu le jour, le circuit primaire pouvant être un circuit à boucle ou intégré (pompes et échangeurs du circuit primaire à l'extérieur ou à l'intérieur de la cuve). Un réacteur à neutrons rapides est caractérisé par une forte densité de puissance, une teneur en matière fissile élevée (combustible à base d'oxyde mixte de plutonium et d'uranium appauvri, la teneur en Pu pouvant varier de 10 à 25 %), un flux de neutrons de haute énergie (de l'ordre de 1 MeV en moyenne), l'absence de modérateur et finalement la possibilité de fonctionner dans différents modes : surgénération, iso-génération ou sous-génération.

Schéma de principe d'un réacteur FBR à chaudière à circuit primaire intégré (type PHENIX)



Dans les réacteurs à neutrons rapides, les sources de production de tritium indirectes et directes sont les suivantes [4][6][15][16] :

- la fission ternaire de l'U et du Pu dans le combustible, le taux de production de tritium, de l'ordre de $740 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$, étant plus élevé que celui correspondant aux réacteurs de puissance à neutrons thermiques¹⁶. Plus de 95 % du tritium produit dans le combustible diffuse par perméation dans le sodium primaire au travers de la gaine en acier inoxydable (contrairement au cas des alliages en zirconium), l'activité de tritium dans le caloporteur étant toutefois maintenue à un niveau faible, de l'ordre de quelques dizaines de milliers de Bq.g^{-1} , compte tenu de la présence de pièges froids mis en place pour épurer le sodium primaire des hydrides et des oxydes présents¹⁷ ;
- la production de tritium dans les barres de commande borées, celle-ci pouvant atteindre des taux voisins de $2\,220 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ ¹⁸ ; le tritium produit dans les barres pouvant former avec les carbures et le lithium du méthane tritié (CT_4) et des hydrides de lithium (LiT) très stables, seule une faible fraction de la quantité produite (moins de 10 %) diffuse dans les barres et passe dans le sodium primaire

(ces barres ne sont pas totalement étanches pour éviter les phénomènes de montée en pression liés à la production d'hélium) ;

- l'activation de certaines impuretés, principalement le bore et le lithium, présentes dans le sodium, le combustible et les matériaux de structure ; le taux de production de tritium dans le caloporteur sodium est évalué au maximum à $74 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$;
- la contamination directe du sodium primaire en cas de rupture de gaine.

Le tritium présent dans le sodium primaire peut ensuite diffuser par perméation dans le sodium secondaire, voire dans l'eau du circuit eau/vapeur, à travers les parois métalliques des composants principaux tels que l'échangeur intermédiaire et le générateur de vapeur. Le retour d'expérience d'exploitation du réacteur SUPERPHENIX (cf. rapport de sûreté de démantèlement) montre toutefois que l'activité en tritium du sodium secondaire reste inférieure d'un facteur 10 environ à celle du sodium primaire, la quantité de tritium présente dans le circuit eau-vapeur représentant moins de 1 % de la quantité présente dans le sodium primaire.

La quantité de tritium accumulée en fin de vie du réacteur dans les pièges froids est de l'ordre de $10\,000 \text{ TBq.GWe}^{-1}$. A titre indicatif, les activités en tritium dans les pièges froids des circuits primaires et secondaires des réacteurs SUPERPHENIX et PHENIX sont respectivement de l'ordre de 660 et 250 TBq aux dates d'arrêt de production d'électricité

de ces deux réacteurs (1997 et 2009 respectivement), ces derniers ayant produit de l'ordre de 0,9 et 3 GWe.an durant toute la durée de leur exploitation. Ainsi, près de 90 % du tritium produit est piégé dans les ensembles de purification du sodium primaire et du sodium secondaire.

A cet égard, il convient de souligner que, lors du démantèlement des réacteurs FBR, des quantités importantes de sodium (plusieurs milliers de tonnes) contenant une grande partie du tritium produit durant toute la phase d'exploitation du réacteur (plusieurs milliers de TBq) devront

être éliminées. Le procédé actuellement envisagé pour traiter le sodium des réacteurs PHENIX et SUPERPHENIX est un procédé basé sur la réaction sodium-eau avec formation de soude et dégagement d'hydrogène, le tritium contenu passant quasi-intégralement dans les effluents gazeux, celui-ci pouvant être, le cas échéant, recombinaison sous forme d'eau tritiée avant rejet. Ainsi, dans le cadre de la conception de nouveaux réacteurs FBR fonctionnant au sodium (déploiement d'un parc de 4ème génération...), il semblerait utile d'examiner les possibilités de récupérer, au moment du démantèlement, le tritium accumulé dans le caloporteur, soit pour le valoriser, soit pour le conditionner en vue d'un entreposage ou d'un stockage direct, cette analyse devant, en tout état de cause, résulter d'une démarche d'optimisation tenant compte de critères techniques et économiques, mais également des enjeux de sûreté et de radioprotection associés à chacune des options envisagées (récupération ou rejet).

Pour l'ensemble des réacteurs de type FBR dans le monde, les valeurs de rejet de tritium par voies liquide et gazeuse, fournies par l'UNSCEAR [1][2][10][11], varient respectivement de 0,4 à $1,8 \text{ TBq.GWe}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et

¹⁶ Des valeurs plus élevées de taux de production sont également citées si l'on prend en compte les fortes incertitudes sur les rendements de fission ternaire de certains isotopes en spectre « rapide ». A titre d'exemple, les données de l'installation SUPERPHENIX font état d'une production annuelle de tritium de 1 110 TBq dans le combustible.

¹⁷ Les données des installations SUPERPHENIX et PHENIX, en cours de démantèlement, font état respectivement de 30 000 et 6 000 Bq.g^{-1} de tritium dans le sodium primaire aux dates d'arrêt de production d'électricité de ces deux réacteurs (1997 et 2009 respectivement).

¹⁸ Les données de l'installation SUPERPHENIX font état d'une production annuelle de 925 TBq de tritium par activation du bore des barres de commande.

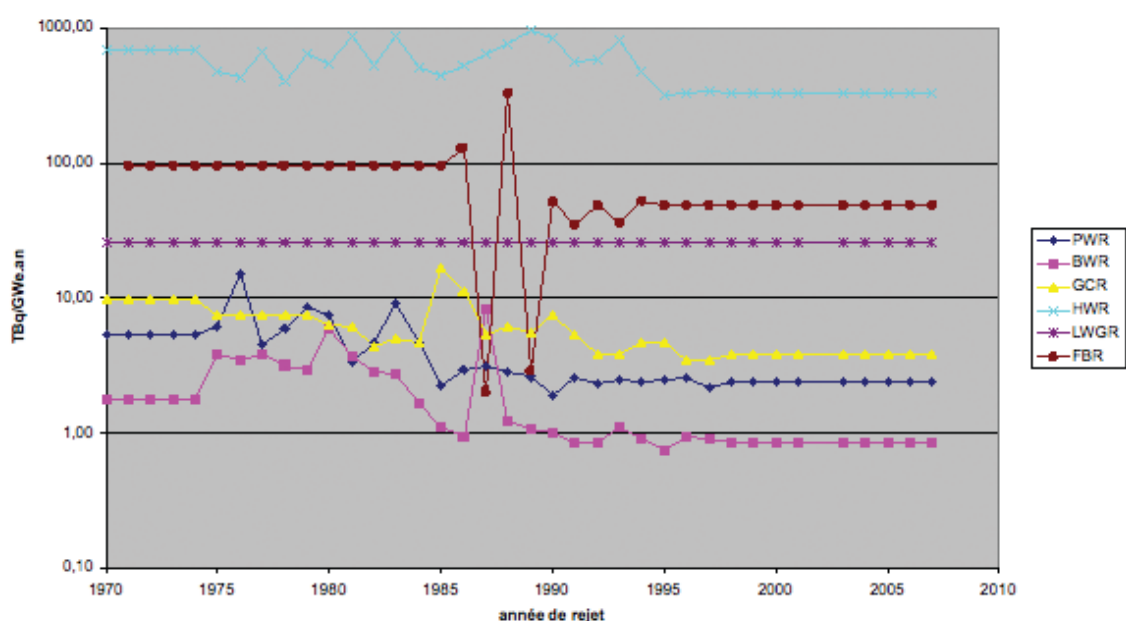
de 44 à 49 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en moyenne, les activités rejetées provenant essentiellement des fuites collectées sur le circuit eau-vapeur et des opérations de rinçage réalisées sur les éléments combustibles lors de leur déchargement pour ce qui concerne les effluents liquides et des ciels de pile pour ce qui concerne les effluents gazeux. A titre indicatif, les rejets gazeux de la centrale PHENIX étaient respectivement de 0,85 et 0,46 TBq.GWe⁻¹.an⁻¹ en 2003 et 2007. Le niveau de rejet normalisé pour le tritium gazeux est par conséquent relativement proche de ceux des réacteurs BWR.

Les variations constatées des taux de rejet normalisés de tritium pour deux années consécutives, principalement durant la période 1975-1985, résultent d'opérations d'exploitation ou de maintenance spécifiques, voire de données trop incomplètes concernant une même filière.

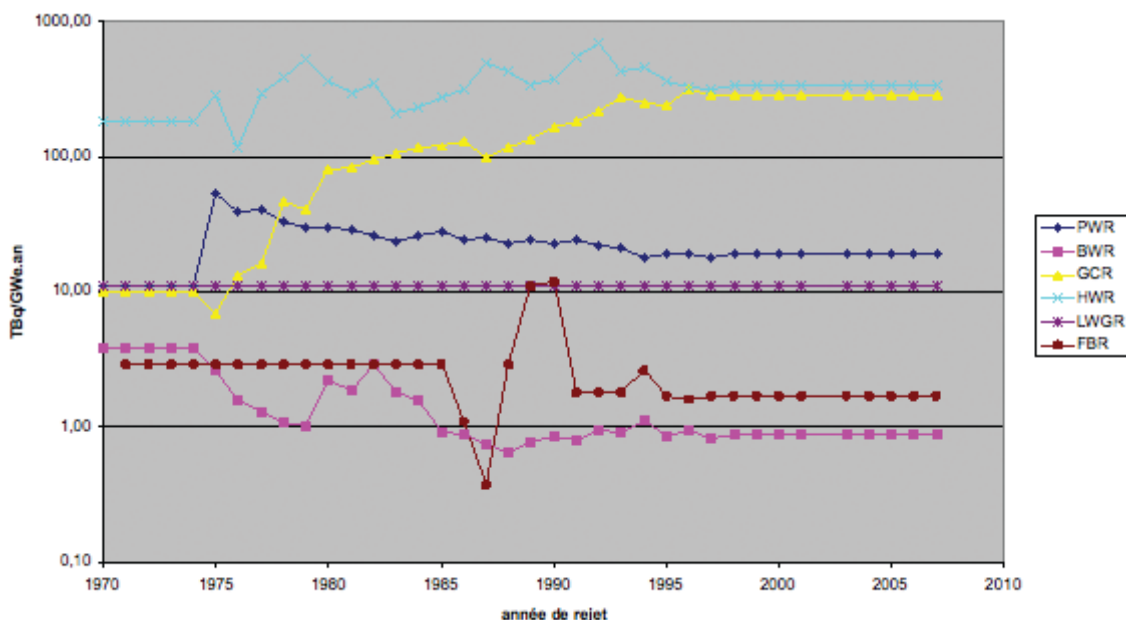
3|2|1|7| Comparaison des rejets en tritium par filière de réacteur

Les évolutions des rejets en tritium gazeux et liquide normalisés pour les différents types de réacteurs nucléaires, extraits des rapports de l'UNSCEAR [1][2][10][11], sont reportées sur les deux graphes ci-après pour les années 1970 à 2007.

Rejets atmosphériques normalisés en tritium pour les réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)



Rejets liquides normalisés en tritium pour les réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)

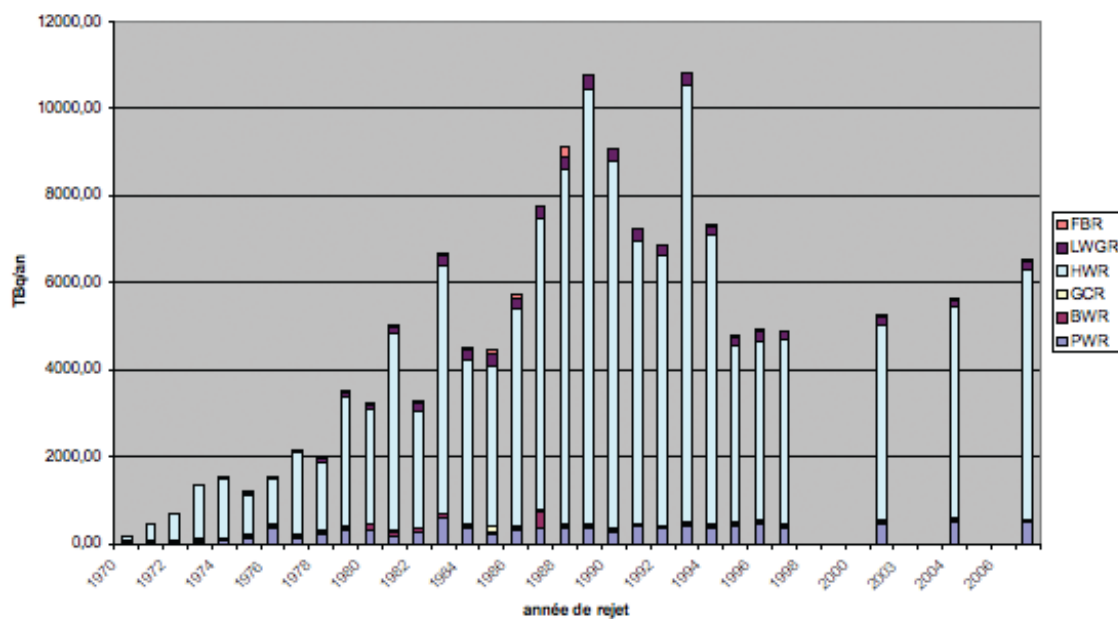


Les bilans des rejets de tritium, par voies gazeuse et liquide, des différents types de réacteurs nucléaires sont reportés sur les deux graphes ci-après pour la période 1970-2007. Ces bilans ont été établis en multipliant les taux de rejets normalisés par les énergies produites annuellement pour chaque type de réacteur.

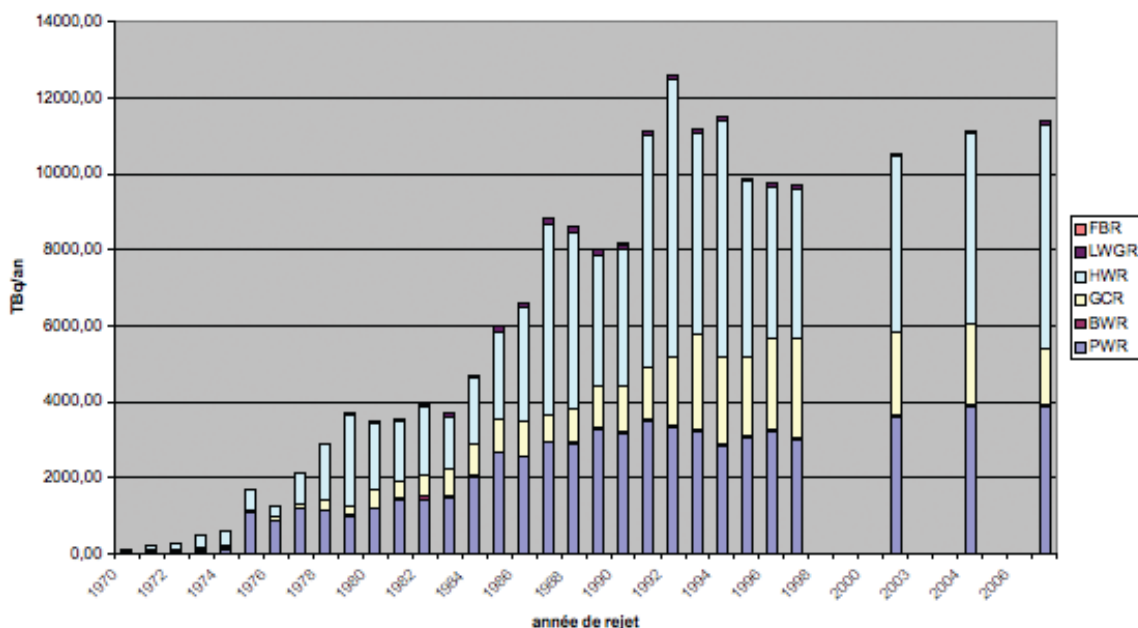
Comme évoqué ci-avant, les rejets atmosphériques en tritium à l'échelle mondiale (de l'ordre de 500 à 600 TBq.an⁻¹ pour les dix dernières années) sont très majoritairement dus aux réacteurs à eau lourde PHWR (85 à 90 %), alors qu'ils ne fournissent qu'environ 5 % de la production nette d'électricité nucléaire. A contrario, les réacteurs à eau légère (PWR et BWR) ne contribuent aux rejets en tritium gazeux qu'à hauteur d'un peu moins de 10 % alors que ces réacteurs fournissent près de 85 % de la production nette mondiale d'électricité.

Les rejets liquides de tritium à l'échelle mondiale (de l'ordre de 10 000 à 12 000 TBq.an⁻¹ pour les dix dernières années) sont principalement dus aux réacteurs à eau lourde PHWR (45 à 50 %), aux réacteurs PWR (30 à 40 %) et aux réacteurs graphite-gaz GCR (10 à 20 %). Toutefois, comme évoqué ci-avant, les réacteurs PHWR et GCR ne fournissent respectivement qu'environ 5 et 1 % de la production nette mondiale d'électricité nucléaire, alors que la part des réacteurs PWR est proche de 65 %.

Rejets atmosphériques annuels en tritium des réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)



Rejets liquides annuels en tritium des réacteurs nucléaires (données UNSCEAR)



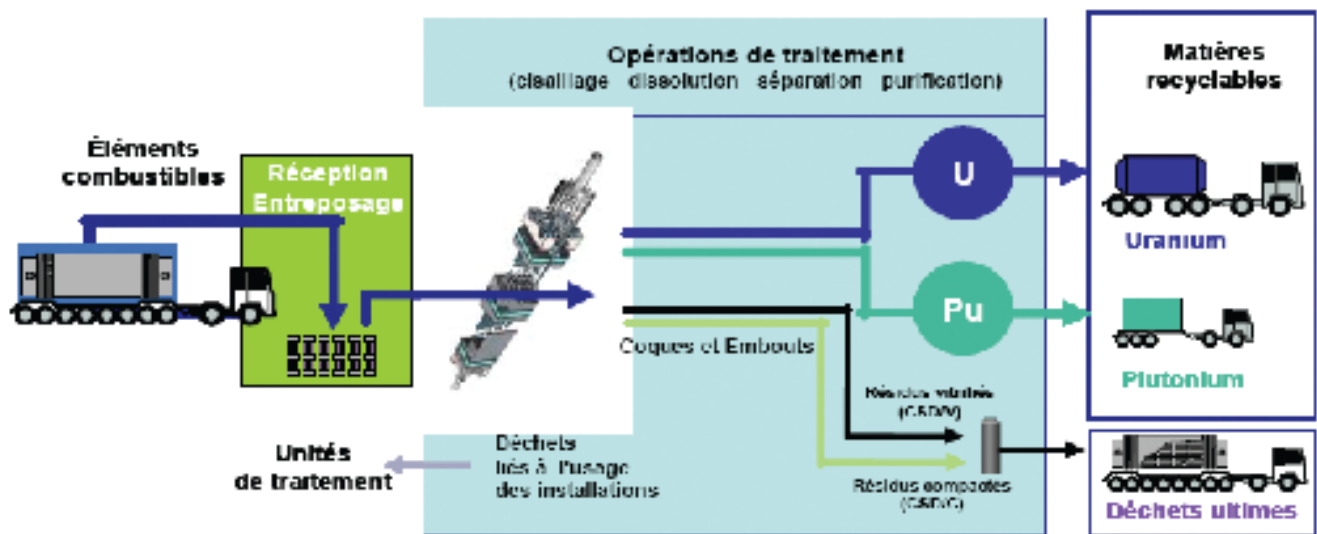
3|2|2| Les usines de traitement de combustibles usés

Les usines de traitement de combustibles usés sont les principales installations nucléaires amenées à rejeter du tritium principalement dans le milieu marin. Le tritium de fission est en effet libéré, pour sa plus grande part, lorsque le combustible irradié, déchargé des centrales nucléaires, est mis en solution pour être traité.

L'objectif industriel du traitement des combustibles usés, basé sur le procédé PUREX, consiste, d'une part à séparer, purifier et conditionner les matières nucléaires, uranium et plutonium, en vue de leur recyclage dans les réacteurs nucléaires de puissance, notamment sous forme de combustibles MOX, d'autre part à séparer et conditionner les déchets ultimes, produits lors de ces opérations, dans des matrices stables adaptées à leur contenu radioactif en vue de leur stockage définitif (par exemple les conteneurs de verre pour les produits de fission). L'établissement AREVA NC de La Hague est aujourd'hui le premier site de traitement industriel des combustibles usés au monde avec une capacité de traitement maximale autorisée de 1 700 tonnes par an.

Le tritium reste ainsi piégé puis précipite sous forme d'hydrures lors du déchargement du combustible du réacteur et de son entreposage en piscine de désactivation. La répartition du tritium entre le combustible et la gaine dépend notamment du type de réacteur, du type de combustible, de son historique d'irradiation et de la vitesse de formation de la couche d'oxyde interne. L'évolution depuis quelques années des rejets annuels de tritium dans les effluents liquides de l'établissement de La Hague semble montrer que la fraction restant dans l'oxyde peut atteindre des valeurs de l'ordre de 80 % des quantités théoriques calculées, alors que le pourcentage présent dans les coques pris en compte lors de la conception de l'usine UP3 était plutôt de l'ordre de 60-70 % [17]. Cette évolution semble confirmer le fait qu'à partir d'une certaine gamme de taux de combustion, l'accroissement de la couche de zircone interne limite de plus en plus le transfert du tritium dans la gaine alors que celui-ci continue d'être produit par fission ternaire au sein de l'oxyde

Schéma simplifié du procédé PUREX



Les opérations réalisées dans ces usines consistent à cisailer les combustibles en tronçons de quelques centimètres, à les dissoudre dans l'acide nitrique à l'ébullition puis à clarifier les solutions obtenues par centrifugation afin de séparer les corps insolubles. L'uranium et le plutonium sont ensuite séparés des produits de fission et purifiés par un procédé d'extraction liquide-liquide utilisant un solvant sélectif, le tributyl-phosphate (TBP), mélangé à un diluant organique inerte. Les produits finis purifiés sont ensuite entreposés, sous forme de nitrate d'uranyle (ou d'oxyde d'uranium) et d'oxyde de plutonium, dans l'attente de leur recyclage.

Les quantités de tritium de fission introduites dans l'usine de traitement avec le combustible usé dépendent principalement du type de réacteur dans lequel ce dernier a été irradié et du type de matériau de gainage entourant le combustible. Comme évoqué précédemment, le tritium est formé dans le combustible par fission ternaire directe des isotopes de l'U et du Pu (à plus de 80 %), par fission ternaire indirecte et activation d'éléments légers (formation via ^6He puis ^6Li) et par capture électronique suivie d'une désintégration (formation via ^3He et ^{16}O). Les quantités de tritium présentes dans le combustible, évaluées à partir des programmes de calcul d'évolution (code CESAR 4) sont de l'ordre de $20 \text{ TBq} \cdot t_{\text{U}}^{-1}$ pour un combustible EL-UOX irradié à $45\,000 \text{ MWj} \cdot t_{\text{U}}^{-1}$, enrichi à 3,7 % et refroidi 4 ans, ces caractéristiques étant proches de celles des combustibles actuellement traités sur le site de La Hague.

Comme indiqué précédemment, lors du séjour en réacteur, une fraction du tritium contenue dans le combustible diffuse dans la gaine du fait de son faible rayon atomique et du gradient thermique, ce phénomène étant limité par la formation, dans le cas des réacteurs à eau légère, de couches de zircone (ZrO_2) sur les parois interne et externe de la gaine.

combustible (des investigations complémentaires sont actuellement menées par AREVA et le CEA pour confirmer ces différents points).

Après le cisailage des assemblages, la majeure partie du tritium contenue dans l'oxyde combustible, non piégée dans les gaines, est libérée lors de la dissolution de l'oxyde puis retrouve sous forme liquide en quasi-totalité (~ 99 %) dans les eaux dites « tritiées ». Dans ces conditions, seulement 1 à 2 % du tritium contenu dans le combustible s'échappe dans les gaz de dissolution (une partie refluant dans le dissolvant avec l'acide recombiné), moins de 1 % étant finalement rejeté à l'atmosphère sous forme gazeuse par le biais de la ventilation « procédé ».

Les effluents tritiés sont ensuite rejetés en mer en intégralité compte tenu de la très forte dispersion apportées par les courants marins et de la dilution isotopique dans l'eau de mer. L'impact radiologique des rejets dans l'eau de mer est considérablement réduit car, outre la dispersion et la dilution, certaines voies d'atteinte ne sont pas concernées : pas de transfert aux chaînes alimentaires terrestres et surtout absence d'utilisation de l'eau de mer comme eau de boisson. Pour ce qui concerne le site de La Hague et compte tenu des modes de vie locaux, l'impact d'un TBq de tritium gazeux, de l'ordre de $10^{-3} \mu\text{Sv}$ (groupe de référence terrestre), est environ 1 000 fois plus important que l'impact d'un TBq rejeté par voie liquide (groupe de référence marin). Ainsi, l'impact dosimétrique annuel des rejets liquides et gazeux de tritium sur les groupes de référence est actuellement inférieur à $0,1 \mu\text{Sv} \cdot \text{an}^{-1}$, soit moins de 1 % de l'impact total pour chacun de ces groupes qui est de l'ordre de 10 à $20 \mu\text{Sv}$. A cet égard, il faut également rappeler qu'il n'existe pas, à l'heure actuelle, de procédé industriel « raisonnable », sur le plan notamment technico-économique, permettant de séparer et de concentrer le tritium, ni de conditionnement fiable permettant de le confiner sur le

long terme ; des études récentes [4] ont en particulier conclu qu'aucun procédé de séparation et de récupération n'a été exploité à une échelle industrielle comparable à celle du traitement de plusieurs dizaines de milliers de m³ par an d'eau tritiée fortement diluée.

Cette stratégie de gestion du tritium a été adoptée par les usines de traitement de combustibles usés localisées sur des sites côtiers (La Hague, Sellafield, Tokai-Mura et Rokkasho-Mura).

Dans l'éventualité d'installations nouvelles, dont la localisation n'autoriserait pas le rejet de tritium (par exemple usine à l'intérieur des terres, non située au bord de fleuves à débits importants et régulier), le procédé de traitement des combustibles devrait a priori être adapté pour limiter les volumes d'effluents tritiés produits et séparer puis concentrer le tritium afin de l'entreposer (pour décroissance) ou le conditionner de façon sûre en vue d'un stockage direct, tout en limitant les transferts de risques sur les travailleurs et l'environnement (exposition accrue des opérateurs lors de la mise en œuvre des procédés, augmentation des rejets gazeux...). En tout état de cause, les choix et dispositions qui permettraient d'optimiser les rejets devraient être définis dès la phase de conception de la future usine et du choix de son site. Les enjeux sur le plan technique et économique et sur le plan de la sûreté et de la radioprotection, associés à la mise en place d'un traitement du tritium et à la production concomitante de déchets tritiés, devraient être comparés à ceux induits par un rejet direct.

Les tronçons de gaine récupérés après dissolution (« coques ») sont ensuite rincés puis compactés, ce procédé ayant été adopté notamment pour les usines de La Hague et retenu pour la nouvelle usine de Rokkasho-Mura (d'autres procédés de conditionnement tels que la cimentation ont également été mis en œuvre). Des essais menés en laboratoire ont permis de vérifier l'absence de relargage de tritium des coques lors de tests de lixiviation (stabilité des hydrures).

Les usines de La Hague ont été conçues de manière à confiner le tritium dans un volume d'eau aussi faible que possible dans les unités de tête d'usine (cisaillement-dissolution) et dans les unités de concentration des solutions de produits de fission, dites « zone tritiée », les objectifs recherchés étant d'éviter la dilution du tritium dans le reste de l'usine (simplification de la manipulation d'acide nitrique dans la zone « non tritiée »), de limiter le risque de contamination des travailleurs, de réduire au maximum les rejets de tritium sous forme gazeuse et de favoriser son rejet sous forme liquide afin de bénéficier de la réduction importante de l'impact apportée par la dilution dans le milieu marin.

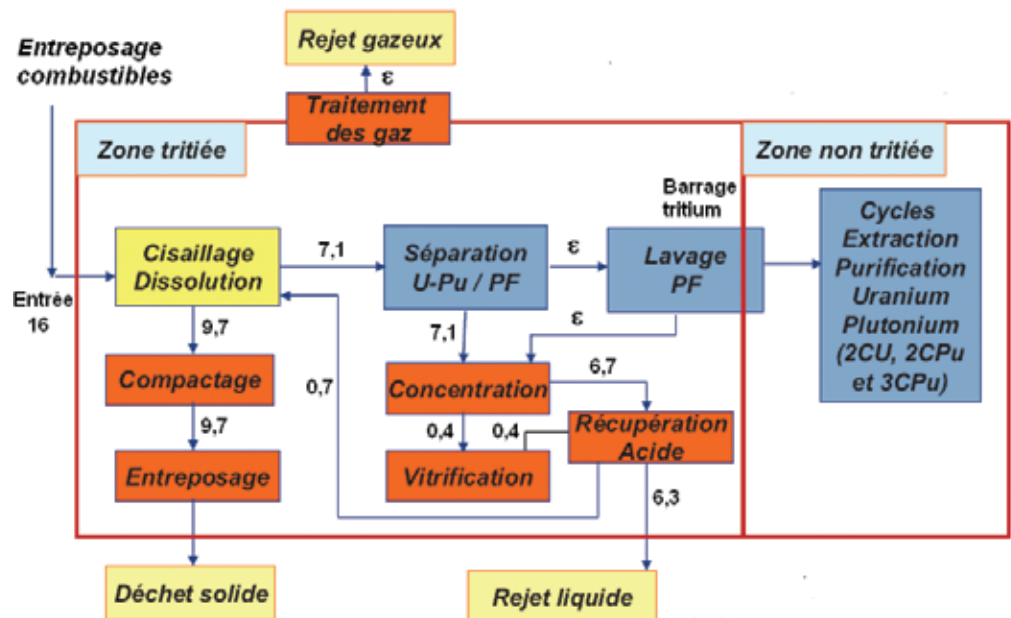
Lors des opérations d'extraction en phase solvant (1^{er} cycle U-Pu) suivant l'étape de dissolution du combustible, le tritium contenu dans la solution de dissolution reste principalement en phase aqueuse avec les produits de fission, une faible fraction pouvant néanmoins suivre le solvant. Le procédé utilisé dans les ateliers de La Hague consiste à limiter autant que possible l'ajout d'eau fraîche en tête d'usine pour éviter la dilution de l'eau tritiée et à établir un « barrage tritium » au niveau du 1^{er} cycle d'extraction en effectuant un lavage du solvant « chargé » par

de l'acide nitrique dilué non tritié de façon à réextraire quantitativement dans les raffinats d'extraction le tritium fixé sur le solvant. Ces raffinats contenant les produits de fission sont ensuite concentrés dans des évaporateurs, le tritium restant préférentiellement en phase vapeur et se retrouvant dans les condensats d'évaporation. Ces derniers sont ensuite décontaminés et rectifiés dans l'unité de récupération de l'acide tritié pour produire de l'acide nitrique concentré en partie recyclé à la dissolution, les distillats produits contenant le tritium rejoignant finalement le flux des « effluents tritiés et iodés », très faiblement actifs, directement rejetés en mer après contrôle [17].

Il convient de noter que les principales usines de traitement « commerciales » en service dans le monde (usines THORP à Sellafield et Rokkasho-Mura au Japon) ont adopté un procédé similaire.

Un exemple de distribution du tritium dans une usine de traitement figure sur le schéma ci-après. Les données chiffrées sont issues du retour d'expérience d'exploitation de l'usine UP3 acquis quelques années après sa mise en service.

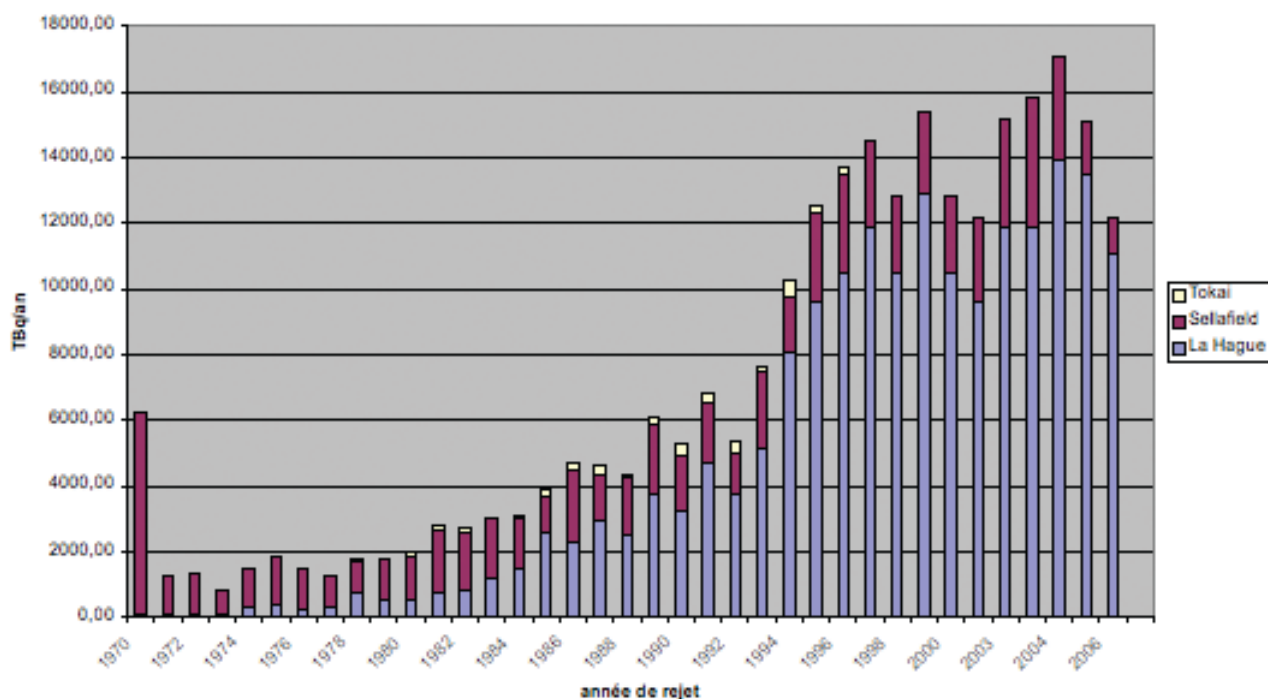
Distribution du tritium dans les flux d'une usine de traitement (en TBq.t_{vi}⁻¹)
(cas d'un combustible irradié à 33 000 MWj.t⁻¹ et refroidi 3 ans)



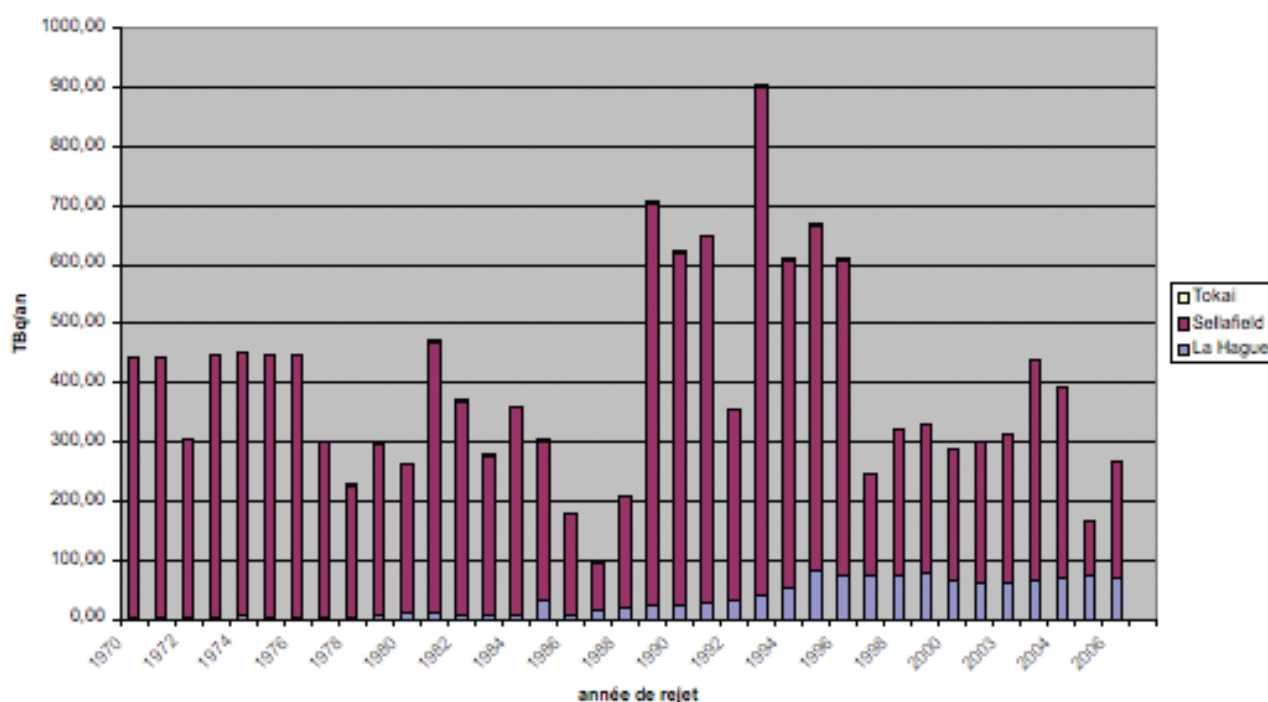
Les performances du procédé sont telles que le facteur de dilution du tritium contenu dans les effluents tritiés produits dans l'unité de récupération acide est de l'ordre de 1/160 000 000. En effet, pour 1000 t de combustible retraitées par an, de l'ordre de 12 000 TBq de tritium (soit 230 g d'eau tritiée) se retrouvent dilués dans 40 000 t d'eau (soit une activité volumique de l'ordre de 3.10⁸ Bq.L⁻¹), ces effluents étant ensuite mélangés, avant rejet, avec les effluents « iodés » provenant des ateliers de tête d'usine. Actuellement, 100 000 à 120 000 m³ d'effluents tritiés et iodés sont rejetés annuellement via la conduite de rejet du site de La Hague, le facteur de dilution dans le milieu marin étant de l'ordre de 0,76 Bq.m³ par TBq.an⁻¹ rejeté, soit une dilution de près d'un facteur 10⁷ des effluents rejetés.

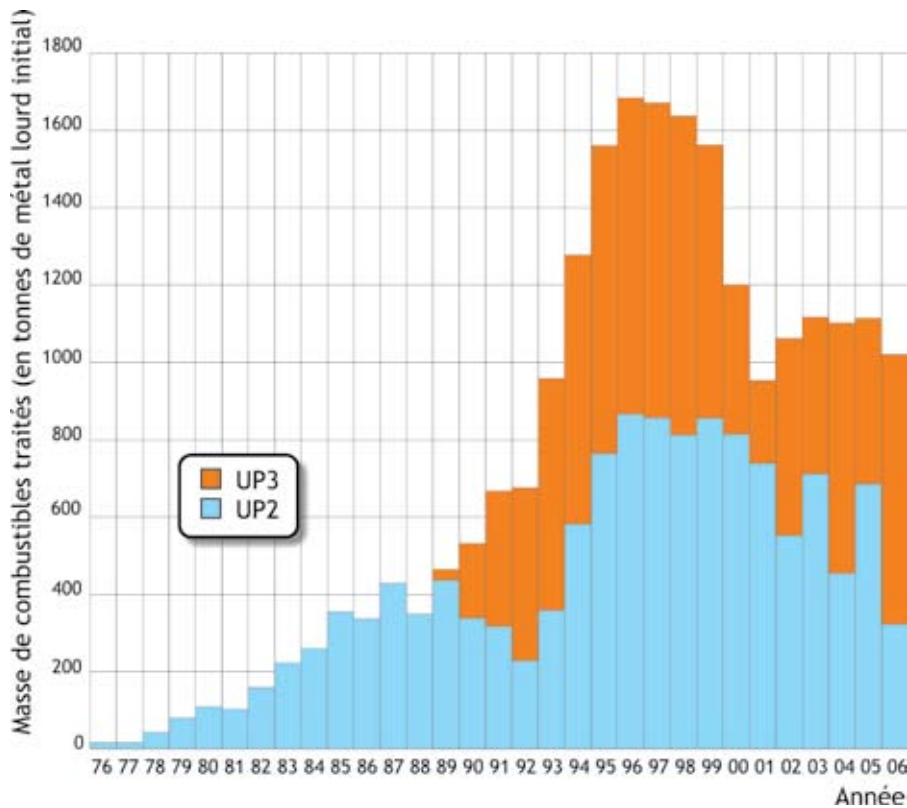
L'évolution des rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux des usines de La Hague, Sellafield et Tokai-Mura [1][18][19][20], ainsi que le bilan du traitement des combustibles usés dans les usines de La Hague [21] sont reportés sur les figures ci-après. La contribution des autres installations de traitement de combustibles à l'échelle pilote ou semi-industrielle (usine de Dounreay, pilote WAK (Karlsruhe)...) est négligeable devant celle de ces usines, les données concernant les installations militaires n'étant pas par ailleurs disponibles (usines de Krasnoyarsk, Toms-7 (Russie)...) .

Rejets liquides annuels en tritium des usines de traitements (données UNSCEAR)



Rejets atmosphériques annuels en tritium des usines de traitements (données UNSCEAR)





Les figures ci-dessus montrent que l'usine de La Hague est le principal contributeur en matière de rejets de tritium par voie liquide dans le milieu marin (environ 80 % du rejet total sur les dix dernières années), ceci pouvant notamment être expliqué par les difficultés de démarrage de l'usine THORP (5650 t ont été traitées sur la période 1994-2005 pour une capacité de traitement nominale de 850 t_{liq}.an⁻¹). Les évolutions des rejets de tritium suivent en première approximation celle des quantités de combustibles traités et plus exactement celle de l'énergie équivalente produite (pour les usines de La Hague, les taux de combustion ont augmenté en moyenne de 30 000 à 43 000 MWj.t_{liq}⁻¹ et les temps de refroidissement ont diminué en moyenne de 9 à 7 ans sur la période 1994-2007).

Toutefois, il faut constater que les rejets moyens de tritium dans les effluents liquides pour la période 2001-2007 (de l'ordre de 12 000 TBq.an⁻¹) sont légèrement supérieurs à ceux de la période 1994-2000 (de l'ordre de 10 000 TBq.an⁻¹) alors que le tonnage traité a diminué significativement entre ces deux périodes (de 1 500 à 1 100 t_{liq}.an⁻¹ environ). Ce constat est à associer à l'augmentation des taux de combustion des combustibles traités et à celle concomitante de la fraction de tritium restant occluse dans l'oxyde combustible et par conséquent rejetée en intégralité avec les effluents liquides (fraction pouvant atteindre plus de 80 % des quantités théoriques calculées, l'évolution de l'activité massique du tritium en fonction du taux de combustion n'étant par ailleurs pas linéaire).

Les rejets de tritium gazeux de l'usine THORP de Sellafield sur la période 1997-2006 (de l'ordre de 240 TBq.an⁻¹ en moyenne) sont environ trois fois supérieurs à ceux des usines de La Hague sur la même période

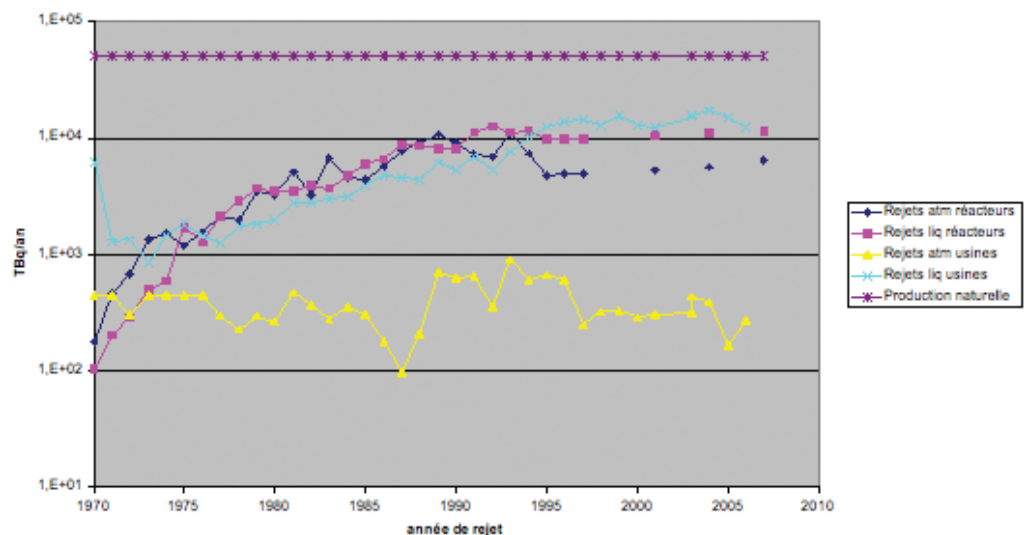
(de l'ordre de 70 TBq.an⁻¹), alors que les quantités de combustibles traitées sont nettement inférieures (de l'ordre de 5 600 tonnes à comparer à 11 000 tonnes environ, les combustibles traités sur les deux sites ayant des caractéristiques comparables). L'exploitant du site de Sellafield a, depuis quelques années, mis en œuvre de nouvelles dispositions pour limiter ces rejets et orienter davantage le tritium vers les effluents liquides.

Pour ce qui concerne le site de La Hague, les valeurs actuelles de rejets liquides et gazeux restent assez éloignées des limites réglementaires fixées par l'arrêté d'autorisation de prélèvements d'eau et de rejets du 8 janvier 2007, respectivement égales à 18 500 et 150 TBq.an⁻¹ (de l'ordre de 70 et 50 % de ces limites). Il faut toutefois souligner que la limite de rejet de tritium par voie liquide pourrait être atteinte en cas d'augmentation des quantités de combustibles traitées dans les usines UP3 et UP2-800 (tonnage maximal autorisé de 1 700 t.an⁻¹), compte tenu également de l'évolution attendue des caractéristiques de ces combustibles (augmentation des taux de combustion et diminution des temps de refroidissement notamment) et de l'incertitude associée à l'évolution de ces rejets dans le temps (fraction du tritium restant dans le combustible). Il en est de même pour un certain nombre de

radionucléides présents dans les effluents rejetés (¹⁰⁶Ru...).

L'évolution des rejets annuels de tritium par voies liquide et gazeuse, pour l'ensemble des réacteurs nucléaires et des principales usines de traitement de combustibles usés dans le monde durant la période 1970-2007, est reportée sur le graphe ci-après, les bilans de ces rejets étant également comparés à la production annuelle de tritium naturel.

Comparaison des rejets annuels en tritium de l'industrie nucléaire civile et de la production annuelle de tritium naturel (données UNSCEAR)



Les rejets liquides des réacteurs et des usines de traitement ont augmenté durant cette période d'environ deux ordres de grandeur alors que le niveau des rejets gazeux des usines est resté sensiblement constant. Depuis 1995, date à partir de laquelle les nouvelles usines UP3 et UP2-800 de La Hague ont pratiquement atteint leur capacité de traitement nominale, les rejets liquides totaux des usines de traitement dépassent ceux des réacteurs nucléaires. En 2007, ces rejets sont du même ordre de

grandeur et de l'ordre de 11 000 TBq.an⁻¹. Les rejets atmosphériques totaux sont de l'ordre de 6 000 TBq.an⁻¹ et de l'ordre de 300 TBq.an⁻¹ respectivement pour les réacteurs nucléaires et les usines de traitement. Ces valeurs sont à comparer à la production naturelle de tritium sous forme d'eau tritiée qui atteint 50 à 70 PBq par an.

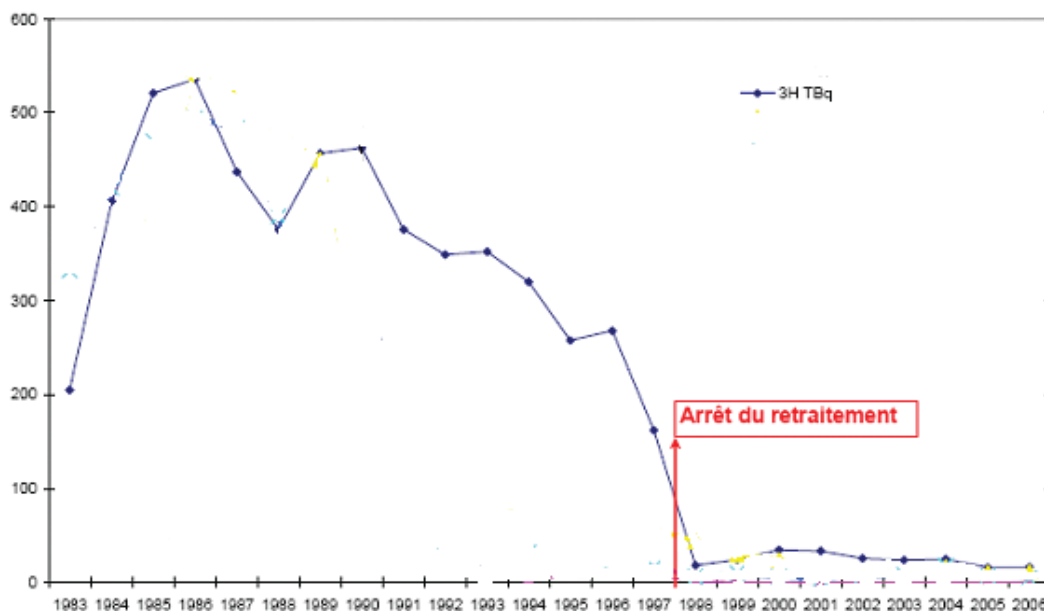
3|2|3| Réacteurs dédiés à la production de tritium et autres installations nucléaires

En France, les autres installations nucléaires civiles et militaires et les réacteurs dédiés à la production de tritium qui rejettent ce radio-isotope sous forme liquide ou gazeuse sont situés principalement sur les sites CEA de Marcoule, Valduc et Bruyères-le-Châtel.

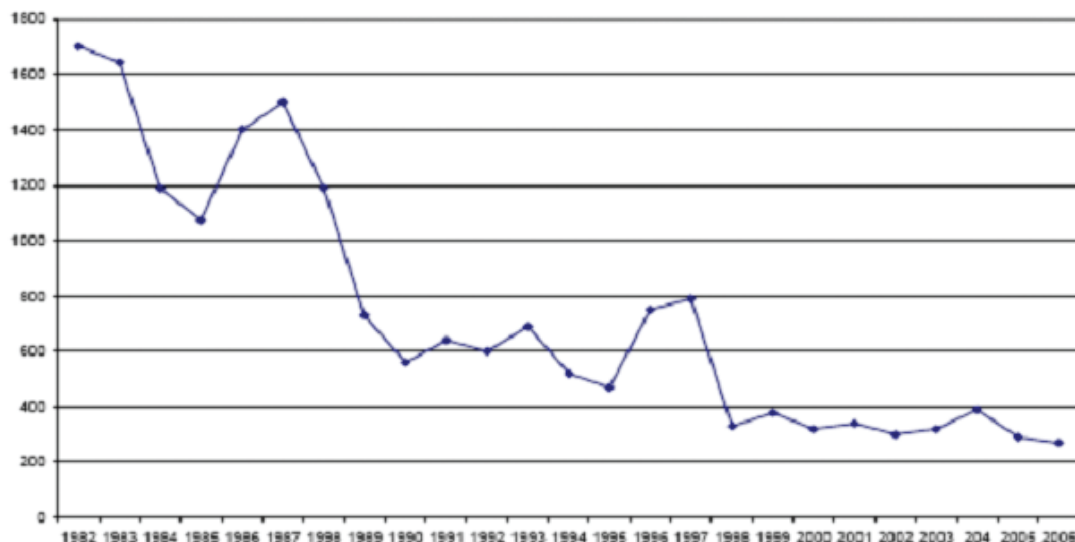
Les évolutions des rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux du centre CEA de Marcoule pour la période 1983-2006 sont reportées sur les figures ci-après [22]. Les installations du site de Marcoule sont constituées notamment d'une « INBS » (production de matières nucléaires intéressant la défense) et de 4 INB civiles (Atalante, PHENIX, Mélox et Centraco) auxquelles il convient d'ajouter les installations de CISbio. L'ensemble des effluents liquides radioactifs transite par la station de traitement des effluents liquides de l'INBS pour épuration et contrôle avant rejet.

L'activité en tritium des effluents rejetés dans le Rhône durant la période 2003-2007 est de l'ordre de 20 TBq.an⁻¹ en moyenne et a atteint aujourd'hui une valeur palier, la limite réglementaire autorisée étant de 2 500 TBq.an⁻¹ (arrêté interministériel datant de 1981 – révision des autorisations de rejets en cours). Cette activité rejetée a considérablement diminué depuis 1998, date de l'arrêt définitif d'exploitation de l'usine de traitement de combustibles UP1, le niveau des rejets ayant atteint 500 TBq dans les années 1980. Les rejets en tritium gazeux du site de Marcoule diminuent progressivement depuis les années 1990 pour atteindre une valeur palier de l'ordre de 350 TBq en 2007, la limite réglementaire autorisée étant de 10 000 TBq.an⁻¹ pour l'INBS. Ces rejets sont dus principalement, depuis 1998 (date d'arrêt de l'usine UP1), au fonctionnement des réacteurs Célestin produisant du tritium et de l'atelier tritium de Marcoule (ATM) assurant l'extraction du tritium des éléments provenant des réacteurs Célestin. Les impacts dosimétriques annuels associés aux rejets liquides et gazeux de tritium sont respectivement inférieurs à 0,1 µSv et de l'ordre de 7 µSv en moyenne sur la période 2002-2006 pour les groupes de référence concernés.

Rejets liquides annuels en tritium du site de Marcoule (en TBq)

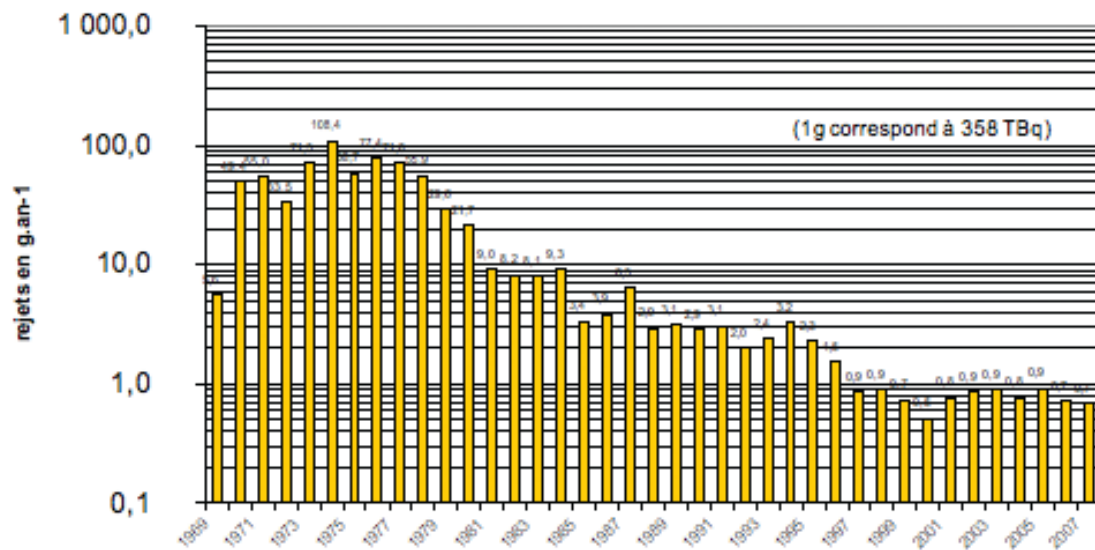


Rejets gazeux annuels en tritium du site de Marcoule (en TBq)



Concernant le centre CEA de Valduc, l'évolution des rejets de tritium dans les effluents gazeux pour la période 1969-2007 est reportée sur la figure ci-après.

Rejets atmosphériques de Tritium à Valduc en gramme par an de 1969 à 2007



Les rejets gazeux sont liés principalement aux activités de production des composants nucléaires des armes (dont la purification du tritium) et au traitement et à l'entreposage des déchets tritiés produits. Les rejets en tritium gazeux du CEA/Valduc ont conduit à un marquage en tritium mesurable des eaux du sol, des nappes et des cours d'eau (l'activité volumique des eaux des sources a dépassé les 1000 Bq/L dans les années 1975-1980). Ces rejets ont considérablement décliné et sont passés d'environ 35 000 TBq.an⁻¹ (100 g.an⁻¹) à un peu moins de 350 TBq.an⁻¹ (1 g.an⁻¹) actuellement (rejet de 251 TBq en 2007), correspondant à moins de 20 % de la limite actuelle de l'autorisation de rejet annuel (1850 TBq). La diminution des rejets résulte principalement de l'amélioration de la conception des installations manipulant du tritium (confinement du procédé, limitation des fuites...), de la mise en place d'un traitement de l'air (ajout de modules de détritiation sur les réseaux de ventilation des boîtes gants, entreposage en bidons de polyéthylène ou piégeage sur zéolithe des quantités d'eau tritiée récupérées...) et de la mise en oeuvre d'une politique de traitement des déchets tritiés [23][24].

Le traitement des déchets tritiés constitue actuellement la principale source de rejets (de l'ordre de 80 % des rejets totaux). Seuls les déchets solides de forte activité sont traités pour diminuer leur taux de dégazage et par conséquent diminuer les rejets de tritium. Les déchets métalliques issus de la première barrière de confinement en contact direct avec le tritium (circuits de procédé) sont triés, découpés et fondus sous vide, les déchets solides organiques fortement dégazants provenant de la deuxième barrière (gants et panneaux de boîtes à gants, emballages en vinyle...) étant déchiquetés, étuvés et compactés. L'air extrait des boîtes à gants dans lesquelles sont effectuées ces opérations, est détritiié, produisant ainsi de l'eau tritiée

piégée ensuite sur des zéolithes, elles-mêmes conditionnées en conteneurs étanches en attente de recyclage. Les déchets détritiiés récupérés sous forme de lingots ou de colis compactés sont conditionnés puis dirigés vers les installations d'entreposage de « faible activité » (taux de dégazage des colis inférieur à 50 MBq.j⁻¹.colis⁻¹), les déchets non traitables, solides ou liquides, provenant notamment de la deuxième barrière de confinement (structures de boîtes à gants, gaines de ventilation, métaux divers...), étant dirigés vers les entreposages de « moyenne activité » (taux de dégazage des colis supérieur à 50 MBq.j⁻¹.colis⁻¹). Le taux de dégazage moyen de ces entreposages est de l'ordre de 1 % par an en moyenne et dépend principale-

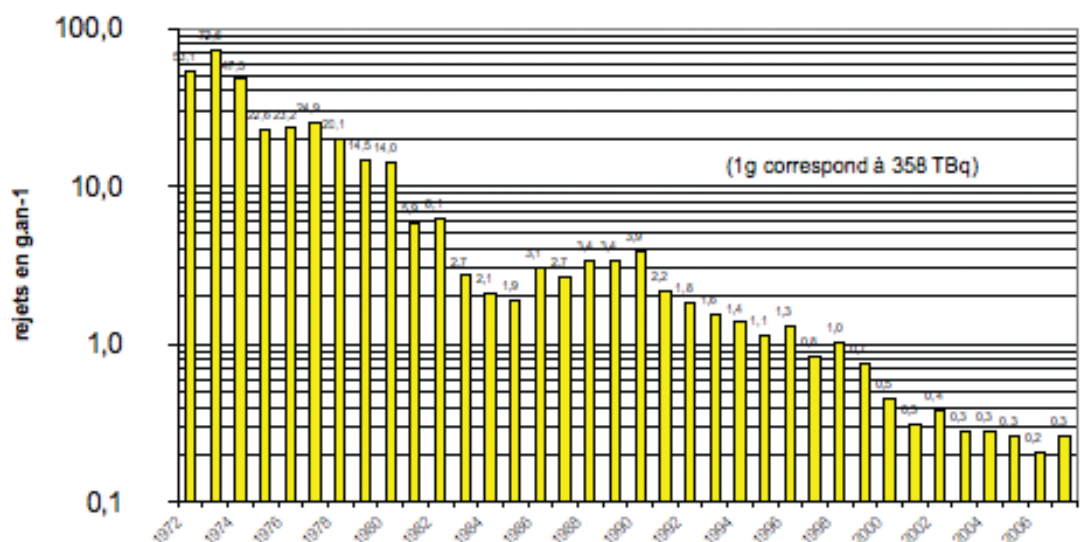
ment de la température ambiante. Les déchets anciens les plus dégazants ont été, quant à eux, mis en surfut dans l'attente de leur traitement.

Enfin, il faut noter que le centre de Valduc ne dispose plus d'autorisation de rejets liquides depuis 1995 (rejet maximal de 3 mg (1 TBq) en 1975 puis de 30 à 300 µg (0,01 à 0,1 TBq) de 1975 à 1995).

Concernant le centre CEA de Bruyères-le-Châtel, l'évolution des rejets de tritium dans les effluents gazeux durant la période 1972-2007 est reportée sur la figure ci-après.

Les rejets gazeux actuels de tritium sont liés principalement aux activités d'assainissement et de démantèlement des installations « tritium » (ces activités ayant été progressivement transférées sur le centre de

Rejets atmosphériques de Tritium à Bruyères en gramme 1972 vs 1969



Valduc) et sont dus en particulier au dégazage des bâtiments et des colis de déchets conditionnés, les unités de détritiation ayant été par ailleurs démantelées. Il faut noter que la grande majorité des déchets tritiés produits seront traités dans les unités de traitement du centre de Valduc ou directement entreposés sur ce site. Les rejets ont considérablement

décru depuis les années 1970 et sont passés d'environ 21 000 TBq.an⁻¹ (60 g.an⁻¹) à un peu moins de 110 TBq.an⁻¹ (0,3 g.an⁻¹) actuellement (rejet de 95,2 TBq en 2007), la limite de rejet réglementaire pour le tritium gazeux étant de 1850 TBq an⁻¹.

Le centre de Bruyères-le-Châtel produit très peu d'effluents liquides moyennement ou fortement actifs et, de ce fait, ne dispose pas d'une station de traitement des effluents. Les rejets liquides sont constitués actuellement des eaux usées des laboratoires inactifs et des effluents douteux des laboratoires actifs évacués via la station d'épuration chimique et rejetés en rivière. Ces rejets ont considérablement décliné depuis les années 1970 et sont passés d'environ 300 GBq.an⁻¹ (moins de 1 mg.an⁻¹) à un peu moins d'une dizaine de GBq.an⁻¹ dans les années 1990 et à environ 1 GBq.an⁻¹ actuellement, la limite de l'autorisation de rejet annuel étant de 75 GBq.

Les moyennes actuelles des rejets annuels de tritium par voies liquide et gazeuse pour l'ensemble des centres de recherche du CEA sont respectivement de l'ordre de 20 TBq (dont 99 % pour le centre de Marcoule) et 700 TBq (dont 85 % pour les centres de Marcoule et Valduc) [25]. Pour l'ensemble de ces installations, les rejets atmosphériques sont largement prédominants et sont supérieurs d'un facteur 7 environ aux rejets gazeux de tritium émis par le parc de réacteurs d'EDF et les usines de traitement de combustibles usés de La Hague (respectivement de l'ordre de 30 et 70 TBq.an⁻¹ en moyenne).

Enfin, pour ce qui concerne les autres pays, la quantité de tritium rejetée dans l'atmosphère à partir des réacteurs dédiés à la production de tritium et autres installations de recherche est de l'ordre de 400 TBq pour le Canada pour l'année 2006 [14]. Ces rejets étaient de l'ordre de 10 000 TBq.an⁻¹ dans les années 1990 pour les États-Unis [26].

3|3| Sources industrielles et petits utilisateurs

Deux utilisations industrielles importantes du tritium peuvent être mentionnées. L'une est la production et l'utilisation de molécules marquées pour des applications médicales ou dans le cadre de recherches scientifiques. Les installations d'Amersham, en Grande-Bretagne, qui rejetaient 500 TBq.an⁻¹ d'effluents atmosphériques avant 2000, rejettent aujourd'hui de l'ordre d'une centaine de TBq.an⁻¹ [27]. Les rejets liquides de tritium liés sous forme de composés organiques dissous en baie de Cardiff (de l'ordre de 500 TBq.an⁻¹ dans les années 1990) ont « marqué » la chaîne alimentaire de l'environnement estuarien, des facteurs de concentration importants (jusqu'à des valeurs de 7000) ayant été observés dans la faune marine [28].

La seconde utilisation industrielle est la production au Canada d'objets luminescents (éclairage...) contenant du tritium sous forme de gaz. Une plaque luminescente « EXIT » peut par exemple contenir de 0,1 à 0,5 TBq. Les rejets annuels liés à cette industrie sont passés progressivement de 1 600 TBq en 2000 à 100 TBq sous forme d'eau tritiée et à 300 TBq sous forme gazeuse en 2006. Ces objets luminescents semblent être à l'origine du marquage des eaux dans certaines décharges américaines [27].

Les petits utilisateurs de molécules marquées (hôpitaux, laboratoires pharmaceutiques, recherche en biologie...) produisent peu de rejets. Il faut noter que le centre CEA de Saclay rejette actuellement de l'ordre de

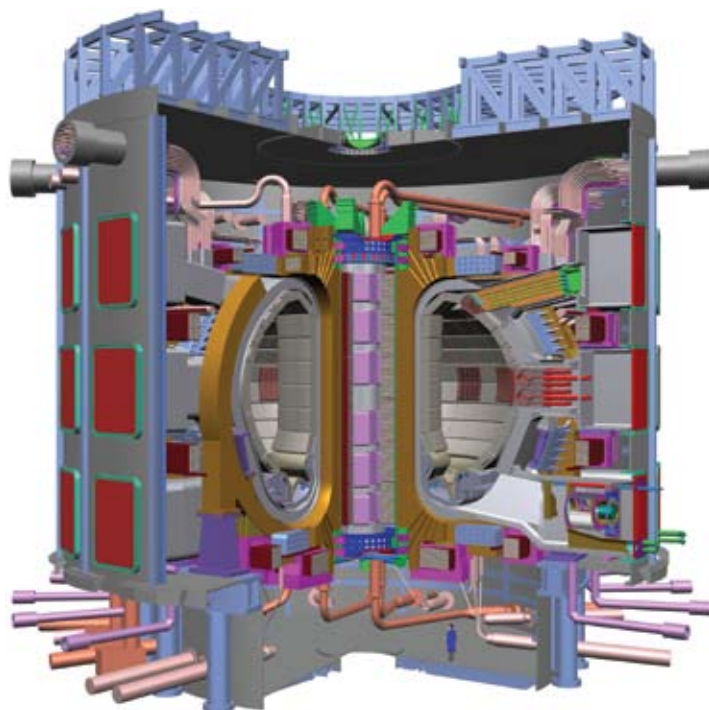
20 TBq.an⁻¹ de tritium gazeux, ces rejets étant essentiellement liés aux activités de recherche en biologie médicale [25].

3|4| Futures sources de production de tritium (ITER)

Les réacteurs à fusion utiliseront et produiront du tritium en grandes quantités. A titre d'exemple, le Joint European Torus (JET), de puissance égale à 16 MWth, a utilisé au total 20 g de tritium.

La future installation ITER en cours d'implantation sur le site de Cadarache vise à démontrer la maîtrise de l'énergie de fusion pendant des durées de l'ordre de 400 s avec une puissance d'environ 500 MWth (soit environ 40 000 « décharges » nominales sur une durée de vie de 20 ans). L'inventaire maximal en tritium de l'installation serait de 4 kg. La consommation annuelle de tritium de l'installation devrait être de l'ordre de 1,2 kg (montée progressive en puissance prévue sur 10 ans). Les données concernant les rejets atmosphériques et liquides ne sont pas encore fixées au stade actuel du projet, l'objectif recherché par l'exploitant d'ITER étant d'optimiser au maximum ces rejets, en premier lieu les rejets atmosphériques. Ces derniers pourraient être de l'ordre de quelques grammes par an [29][30].

Vue en coupe du réacteur ITER



Dans un but d'exhaustivité, il est à noter que les lasers de puissance, comme le Laser MegaJoule (LMJ) en France, devraient aussi rejeter quelques milligrammes de tritium par an.

¹⁹ L'incident de 1976 résulte d'un débordement dans le réseau des eaux pluviales du centre, des eaux de drainage des abords de tranchées contenant, entre autres, des déchets tritiés. Malgré la reprise d'une grande partie de ces déchets, l'ensemble du massif est resté imprégné de tritium, celui-ci diffusant dans la zone non saturée. La mise en place de la couverture, achevée en 1996, a conduit à une diminution d'un facteur 100 environ du débit d'infiltration dans les ouvrages et, par voie de conséquence, du relâchement de tritium au sein du stockage. A titre indicatif, il reste actuellement moins de 300 TBq de tritium immobilisé dans les déchets stockés et les ouvrages. L'activité actuellement relâchée par le stockage est de l'ordre de 40 GBq.an⁻¹, ce flux d'activité ayant décliné de près d'un facteur 1000 depuis la mise en place de la couverture.

4 | Inventaire des déchets tritiés

Il convient tout d'abord de rappeler qu'entre 1967 et 1982, environ 20 PBq de déchets tritiés ont été éliminés par déversement en mer. Ces immersions ont été interrompues à la suite de la convention de Londres (1972) et aux moratoires qui ont suivi, auxquels la France a souscrit.

4.1 | Filières opérationnelles pour les déchets tritiés

Les filières disponibles pour l'évacuation de déchets tritiés concernent uniquement les déchets solides et liquides les moins actifs, issus notamment des activités des « petits producteurs », susceptibles d'être traités dans les installations SOCATRI ou CENTRACO (de l'ordre de $200 \text{ m}^3 \cdot \text{an}^{-1}$) ou d'être évacués directement vers les sites de stockage actuels de l'ANDRA (CSTFA ou CSFMA), les critères d'acceptation étant toutefois très restrictifs. Pour mémoire, le stockage de déchets contenant des quantités significatives de tritium, de l'ordre de 1 000 TBq (valeur de l'inventaire initial réactualisée en 2003), au Centre de Stockage de la Manche (CSM), a conduit à un marquage durable de l'environnement, notamment à la suite de l'incident de 1976¹⁹.

Ce retour d'expérience a conduit l'ANDRA à limiter fortement les quantités de tritium susceptibles d'être acceptées dans le centre de stockage de déchets de faible et de moyenne activité et à vie courte de Soulaïnes (CSFMA), mis en service en 1992, pour éviter le marquage par le tritium des sols et de la nappe phréatique [31]. En effet, le tritium, à l'état d'hydrogène tritié, diffuse facilement, du fait du faible diamètre de son noyau, à travers les différentes barrières, y compris à travers les matériaux utilisés habituellement pour confiner les autres radionucléides, puis migre vers le milieu naturel sous forme de gaz ou d'eau tritiée. De par cette capacité à se déplacer facilement, sous forme de relâchement diffus, hors des colis et des ouvrages de stockage (à l'état d'eau tritiée, le tritium est extrêmement mobile et suit l'eau jusqu'à l'exutoire), le tritium peut provoquer un marquage de l'environnement facilement détectable (dès quelques $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$), son impact radiologique restant toutefois très réduit compte tenu de sa faible radiotoxicité.

En pratique, l'acceptabilité des déchets tritiés au CSFMA est étudiée au cas par cas, en fonction notamment des caractéristiques intrinsèques des colis concernés (taux de dégazage...), de leur nombre et de leur mode de conditionnement. Ainsi, même si ceux-ci sont conformes aux spécifications d'acceptation du CSFMA (en particulier : capacité maximale radiologique du centre de 4 000 TBq, taux de dégazage inférieur à $2 \text{ GBq} \cdot \text{t}^{-1} \cdot \text{j}^{-1}$, LMA de $2 \cdot 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$ et activité inférieure à 1 GBq par fût à compacter), la volonté de l'ANDRA de préserver autant que possible l'absence de marquage du site rend, de fait, très difficile l'évacuation de déchets tritiés des différents sites de production, quelle qu'en soit leur origine, sans traitement ou entreposage préalable. Il convient de noter que, malgré les dispositions de conception et d'exploitation adoptées par l'ANDRA, une présence de tritium a été observée depuis quelques années de manière très ponctuelle et localisée dans la nappe sous le centre, sans toutefois pouvoir l'attribuer de façon certaine au stockage.

Le centre de stockage de déchets de très faible activité de Morvilliers (CSTFA), mis en service en 2003, vise le même objectif, le risque de marquage de l'environnement conduisant à limiter l'activité globale acceptée par alvéole. Notamment, un suivi particulier de la migration du tritium est mis en œuvre selon une méthodologie définissant un certain nombre d'indicateurs environnementaux et de seuils indicatifs en termes d'activité totale stockée sur le centre. Dans ce cadre, l'acceptation d'un lot de déchets contenant du tritium est jugée notamment sur la

base d'une évaluation préalable de la quantité totale de tritium contenue dans le lot.

Le centre de stockage FAMA de l'Aube



Par ailleurs, les déchets contenant des radionucléides « à vie longue », tels que les déchets de structure (coques et embouts) issus du traitement de combustibles usés aujourd'hui compactés (colis CSD-C), les déchets de graphite issus du démantèlement des réacteurs graphite-gaz où les barres de contrôle des réacteurs à base de carbure de bore (B_4C), peuvent également contenir des quantités significatives de tritium. Celui-ci, piégé dans ces déchets notamment sous forme d'hydrures, y est très peu mobile (le taux de dégazage est inférieur à $10^{-6} \cdot \text{an}^{-1}$). Ces déchets sont destinés aux futurs centres de stockage en formation géologique profonde HA/MA-VL et en sub-surface FA-VL actuellement à l'étude.

Plus précisément :

- le modèle d'inventaire des colis de déchets HA-VL [32], utilisé par l'ANDRA pour les études de faisabilité du stockage, fait état d'environ 40 000 colis de déchets compactés CSD-C (déchet de type B) produits principalement par les ateliers de cisailage-dissolution des usines de La Hague et contenant au maximum 20 TBq par colis (pour un temps de refroidissement moyen de 8 ans, après déchargement du réacteur), soit un inventaire total de l'ordre de 800 PBq ;
- le dossier établi par l'ANDRA (2004), relatif à la conception d'un centre de stockage en sub-surface des déchets de graphite, fait état d'environ 20 000 tonnes de déchets de graphite issus du démantèlement des réacteurs UNGG de première génération, l'activité totale en tritium contenue dans ces déchets étant estimée à environ 4 670 TBq ;
- les barres de contrôle borées des réacteurs PWR peuvent contenir jusqu'à environ 2 TBq.GWe⁻¹ en fin de vie.

¹⁹ Il n'est pas acquis non plus que cette capacité soit utilisée en totalité, eu égard notamment aux inquiétudes que suscite le marquage des nappes phréatiques dans le public.

²¹ D'un point de vue réglementaire, les choix en matière de rejets retenus par les producteurs doivent être clairement explicités et justifiés dans les dossiers de demandes d'autorisation de rejets et les référentiels de sûreté des installations concernées, leur approbation ne pouvant relever que d'une étude au cas par cas. De plus, les dispositions permettant d'optimiser les rejets doivent être définies dès la phase de conception des installations. Cette optimisation doit également être envisagée durant toute la durée d'exploitation des installations, dans le cadre des réexamens de sûreté décennaux, voire au titre des autorisations de rejets demandant notamment la transmission à une échéance renouvelée d'études technico-économiques visant à réduire les rejets chimiques et radiologiques de l'installation (cas par exemple de l'arrêt d'autorisation de rejets de l'établissement AREVA de La Hague). Ainsi, l'exploitant doit démontrer qu'il a optimisé ses rejets et utilisé les meilleures techniques disponibles dans des conditions réalisables, compatibles avec les enjeux de sûreté et de radioprotection et à un coût économiquement acceptable, au même titre qu'il doit démontrer que la sûreté de son installation est au meilleur niveau raisonnablement possible.

4|2| Déchets tritiés sans filière

Les déchets radioactifs contenant du tritium en proportion significative, actuellement sans exutoire, sont majoritairement produits par le CEA dans le cadre de ses activités de recherche et de production, notamment pour ses applications militaires. La majorité des déchets tritiés déjà produits, « purs » ou « mixtes » (associés à de l'uranium ou d'autres radionucléides), sont entreposés sur les sites de Valduc et de Marcoule et représentent un peu plus de 3 500 m³ pour un inventaire estimé de l'ordre de 5 200 TBq (à fin 2007). Ces déchets sont regroupés (après traitement pour les plus chargés) en fonction de leur inventaire en tritium et plus particulièrement de leur taux de dégazage (cf. ci-dessus).

D'autres déchets tritiés sans filière sont issus des applications civiles du CEA (recherches en biologie médicale, exploitation des réacteurs de recherche...) et du nucléaire diffus (« petits producteurs ») dans des secteurs aussi variés que la recherche en biologie, la pharmacie, l'horlogerie ou les transports (peintures luminescentes, ampoules de gaz, solvants, liquides scintillants, molécules marquées, parasurtenseurs...) et la défense nationale, le volume de ces déchets étant évalué à environ 50 m³ pour une activité totale de tritium de 300 TBq à fin 2006 [33]. Ces déchets sont entreposés sur les sites des producteurs.

Enfin, l'installation ITER générera également, à partir des années 2020, des déchets tritiés, successivement lors des phases d'exploitation et de démantèlement. En se basant sur une durée d'exploitation de 20 ans et sur une durée similaire pour la phase de démantèlement, la quantité totale de déchets qui sera produite est estimée à environ 35 000 tonnes réparties de la manière suivante : 30 % de déchets de très faible activité (TFA), 60 % de déchets de faible et de moyenne activité à vie courte (FMA-VL) et 10 % de déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL).

Ces déchets peuvent être notamment activés et tritiés (composants internes à la chambre à vide), contaminés par du béryllium et du tritium ou uniquement tritiés (déchets issus des activités liées au cycle du combustible DT). À l'horizon 2060, les déchets produits seront prépondérants en termes de volume et d'inventaire en tritium (plus de 30 000 TBq), comparés aux autres sources de déchets tritiés. Il faut toutefois noter que des incertitudes importantes demeurent sur cet inventaire, dans la mesure où les options générales de conception des systèmes et équipements d'ITER ne sont pas définitivement arrêtées, certaines d'entre elles (choix des matériaux de protection radiologique, fréquence de remplacement des composants internes...) étant de nature à influencer de manière significative la quantité de déchets tritiés produits [29].

Les modalités de traitement et de conditionnement de ces déchets, qui seront établies en fonction de leurs caractéristiques radiologiques et chimiques et qui permettront leur prise en charge dans les centres de stockage, le cas échéant après entreposage pour décroissance, sont actuellement en cours d'étude. Il est d'ores et déjà prévu de récupérer le tritium des composants internes, qui généreront des déchets MA-VL lors des activités de maintenance, par traitement thermique dans les cellules « chaudes » d'ITER. Les autres déchets seront conditionnés dans l'installation avant leur envoi, pour décroissance radioactive, vers les modules adéquats de la future installation d'entreposage des déchets tritiés sans filière, dont la construction est prévue dans le cadre du projet EDTSF (cf. ci-après), ou directement vers les centres de stockage de l'ANDRA. Les déchets MA-VL et les déchets tritiés purs, générés durant la phase d'exploitation et présentant une activité supérieure aux seuils d'acceptation de ces installations, seront entreposés dans ITER jusqu'à la phase de démantèlement.

4|3| Projet d'entreposage de déchets tritiés sans filière (EDTSF)

Face à cette absence de filière pour la majeure partie des déchets tritiés français, la loi de programme n°2006-739 du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs prévoit, dans

le cadre du déploiement du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR), « la mise au point pour 2008 de solutions d'entreposage des déchets tritiés contenant du tritium permettant la réduction de leur radioactivité avant leur stockage en surface ou à faible profondeur », cette étude ayant été confiée au CEA.

Le dossier d'orientation pour l'entreposage des déchets tritiés sans filière (projet EDTSF), transmis fin 2008 à l'ASN, concerne l'ensemble des déchets tritiés solides déjà produits et à produire jusqu'à l'horizon 2060, ceux-ci provenant pour l'essentiel, comme évoqué ci-avant, des activités de la direction des applications militaires du CEA, de la défense nationale, de l'installation ITER et du nucléaire diffus. Ce dossier présente l'inventaire de ces déchets, regroupés en six catégories (déchets tritiés purs ou mixtes de très faible activité, déchets tritiés purs peu dégazants, déchets tritiés purs dégazants, déchets uraniés tritiés, déchets irradiants tritiés contenant des radionucléides à vie courte et déchets irradiants tritiés contenant des radionucléides à vie longue). À chacune de ces familles est associé un type d'entreposage (allant de l'entrepôt en bardage métallique, clos et couvert, mais non confinant, au concept de puits ventilés) dont les principales options de conception sont décrites. L'objectif visé est de permettre un entreposage sûr des déchets tritiés pendant une période de 50 ans préalablement à leur stockage dans des centres de l'ANDRA. Les installations futures d'entreposage devraient être construites au plus près des principaux lieux de production ou de traitement (ce sera le cas en particulier pour ITER), ceci afin de limiter le transport de grandes quantités de déchets et de répondre, au moins dans un premier temps, au constat de saturation des installations d'entreposage actuelles, par ailleurs de conception ancienne.

L'évaluation de ce dossier par l'IRSN a conduit à conclure que la création de nouveaux entreposages sûrs pour les déchets tritiés sans filière, préalablement à leur stockage, devrait apporter une solution concrète à leur gestion. Toutefois, compte tenu de la capacité radiologique du CSFMA actuel (ou d'un centre futur de capacité similaire), limitée au regard du tritium²⁰, et des incertitudes sur les quantités de déchets tritiés que produiront notamment le réacteur ITER et le démantèlement des installations du CEA, une approche prudente devrait être adoptée pour définir les capacités et les durées d'entreposage nécessaires. En particulier, la capacité supplémentaire nécessaire pour entreposer ces déchets sur une durée de l'ordre du siècle devrait être évaluée et l'incidence de l'augmentation de la durée d'entreposage sur la conception des installations également examinée.

En tout état de cause, la durée maximale d'entreposage, la possibilité de reprendre à tout moment, dans des conditions de sûreté satisfaisantes, les colis de déchets entreposés et la nécessité de réduire autant que possible les rejets dans l'environnement (mise en œuvre d'un traitement amont permettant de réduire le dégazage des déchets entreposés, implantation d'unités de détritiation...), tout en tenant compte des risques d'exposition aux rayonnements ionisants pour les travailleurs et des possibilités de gestion des déchets tritiés secondaires qui seront produits dans ces conditions, constitueront des données de conception importantes de ces installations.

5| Evaluation des différentes stratégies et techniques possibles de gestion du tritium

De manière générale, il faut rappeler que, comme toute industrie, les activités nucléaires génèrent des sous-produits, dont certains sont radioactifs, et ce quels que soient les efforts réalisés en matière de prévention, de réduction à la source, de recyclage ou de valorisation. L'exploitant a ainsi le choix entre traiter ces sous-produits en tant que déchets avant leur élimination (tout en réduisant les volumes produits) ou, lorsque

leurs caractéristiques le permettent, les rejeter sous forme d'effluents (liquides ou gazeux) dans l'environnement.

Toutefois, le fait de vouloir récupérer et gérer ces sous-produits en tant que déchets en vue d'un entreposage ou d'un stockage doit conduire l'exploitant à s'interroger, dans le cadre d'une démarche d'optimisation, non seulement sur la faisabilité en termes techniques et économiques des procédés de séparation et de conditionnement nécessaires, mais également sur les gains obtenus en termes de risques et d'impact radiologique, et ce pour l'ensemble des étapes concernées (installations de séparation, de conditionnement et d'entreposage) jusqu'au stockage. En effet, en dessous d'un certain seuil de concentration en radionucléides, ceux-ci ne peuvent plus, en général, être « raisonnablement » récupérés pour des raisons techniques ou économiques ou parce que les opérations de séparation et de confinement, associées à la production de déchets, sont de nature à induire un impact radiologique sur les travailleurs et une augmentation des risques sans commune mesure avec le gain espéré pour le public. Les enjeux de sûreté et de radioprotection sont, dans ces conditions, nettement supérieurs à ceux induits par le rejet (liquide ou gazeux). Les radionucléides sont alors rejetés dans le milieu après vérification que leur impact sur le public et l'environnement reste acceptable et autorisation. Ce choix participe donc également d'une démarche visant à minimiser l'impact global de l'installation nucléaire concernée²¹.

Les rejets de tritium des installations nucléaires (notamment des réacteurs nucléaires de puissance et des usines de traitement de combustibles usés) relèvent totalement de cette démarche d'optimisation. Par conséquent, il apparaît utile, dans le cadre d'une démarche de progrès continu, de dresser un bilan des différentes techniques disponibles, en cours de développement ou envisageables à plus long terme, pour piéger, séparer et immobiliser ce radionucléide en vue d'un entreposage pour décroissance radioactive ou d'un stockage, en précisant notamment leurs avantages et inconvénients, tant sur le plan technique que sur celui des risques induits, en évaluant en particulier les efforts de R&D restant à fournir pour aboutir à une démonstration de faisabilité à l'échelle industrielle. Ainsi, les enjeux technico-économiques et les enjeux de sûreté et de radioprotection, associés à la mise en place d'un traitement du tritium et à la production concomitante de déchets tritiés, pourraient être objectivement comparés à ceux induits par un rejet direct.

5|1| Evaluation des procédés de séparation et de récupération du tritium

La stratégie permettant de réduire l'impact des rejets de tritium dans l'environnement émanant des centrales nucléaires ou des usines de traitement de combustibles usés consisterait à piéger, immobiliser et conditionner sous une forme appropriée le tritium présent dans les effluents liquides en vue d'un entreposage permettant sa décroissance radioactive ou d'un stockage direct sous forme de déchet ultime.

La solution la plus simple a priori consisterait tout d'abord à entreposer directement les effluents à rejeter dans des cuves afin de réduire leur activité volumique en tritium par simple décroissance radioactive. Toutefois, les volumes très importants de ces effluents (de l'ordre de 10 000 à 12 000 m³.an⁻¹ pour un réacteur du parc EDF et de 40 000 m³.an⁻¹ pour une usine traitant annuellement 1 100 tonnes de combustibles usés) rendrait très difficile la mise en œuvre d'une telle stratégie. En effet, les capacités d'entreposage maximales nécessaires, en considérant une période d'entreposage égale à la période de décroissance radioactive du tritium (12,3 ans), permettant de réduire son activité d'un facteur 2, seraient respectivement de l'ordre de 30 000 m³ pour un site comportant deux tranches REP 1 300 MWe (en supposant de plus un recyclage volontaire des effluents tritiés primaires pour reconcentration) et de 500 000 m³ pour une usine traitant 1 100 tonnes de combustibles usés par an. Par ailleurs, ces entreposages pourraient conduire à des rejets de tritium gazeux plus importants en fonctionnement normal et induire

des risques supplémentaires de rejets en situation accidentelle, leur impact étant progressivement accru au fur et à mesure de l'augmentation des quantités de tritium entreposées. Dans le cas particulier des CNPE, il faut également souligner que le déstockage au bout d'une douzaine d'années des effluents entreposés pourrait s'avérer difficile, voire impossible, en particulier pour des centrales en bord de rivières à faible débit, compte tenu notamment des concentrations maximales réglementaires à respecter au niveau des exutoires. Ces difficultés seraient encore accrues s'il était décidé d'entreposer ces effluents sur des durées plus importantes pour diminuer davantage encore l'activité en tritium rejetée.

Ainsi, la mise en œuvre de procédés permettant de décontaminer les effluents tritiés et de concentrer le tritium récupéré dans un volume d'effluents réduit, notamment par séparation isotopique, apparaît indispensable pour obtenir des volumes compatibles avec les options d'entreposage ou de conditionnement étudiées, le tritium présent dans les effluents à rejeter étant de fait extrêmement dilué (de l'ordre de 10⁶ Bq.L⁻¹ pour les CNPE et 10⁸ Bq.L⁻¹ pour les usines de traitement). Les principaux procédés potentiellement applicables regroupent les techniques de distillation sous vide, d'électrolyse, de séparation sur résines et d'échanges chimiques. Ces techniques ont été essentiellement développées et mises en œuvre dans le cadre de la production, du retitrage et de la détritiation de l'eau lourde présente dans le caloporteur des réacteurs HWR et de la séparation des isotopes de l'hydrogène présents dans les effluents gazeux des réacteurs prototypes à fusion thermonucléaire en fonctionnement (JET) ou en cours de développement (ITER). Pour ce qui concerne les usines de traitement, une autre possibilité serait de réduire au maximum la production d'effluents tritiés à la source en adaptant le procédé TRILEX déjà partiellement mis en œuvre sur le site de La Hague (cf. ci-après) ou en s'appuyant sur des procédés évolutifs comme la voloxydation ou la pyrochimie, capables d'extraire le tritium du combustible irradié.

5|1|1 Procédé de voloxydation

Ce procédé, qui n'a jamais été mis en œuvre à l'échelle industrielle et dont l'objectif premier est de simplifier le procédé PUREX en séparant, lors des opérations de tête, un certain nombre de radionucléides gênants pour la suite de ce procédé, consiste à chauffer dans un four le combustible cisailé à une température de l'ordre de 500 °C sous un flux d'air ou d'oxygène afin de convertir l'oxyde d'uranium en U₃O₈. Cette montée en température provoque l'éclatement du combustible et de son gainage et permet, en particulier, le relâchement d'une fraction significative du tritium présent dans l'oxyde irradié sous forme de gaz (plus de 90 %), celui-ci pouvant être récupéré sous forme d'eau tritiée, après passage sur un catalyseur, puis piégé sur un support solide [4]. Les essais réalisés [34] conduisent à un volume d'effluents tritiés générés de l'ordre de 20 L.t_U⁻¹ (à comparer à un flux d'environ 4 000 L.t_U⁻¹ pour les usines actuelles). Toutefois, ce traitement induit des risques d'inflammation des débris de gaine en zircaloy (cas des combustibles LWR), ce matériau étant particulièrement pyrophorique à l'état divisé, et conduit également à un relâchement important de produits de fission gazeux, volatils ou semi-volatils (iode 129, krypton 85, carbone 14, ruthénium 106, césium 137...), qui nécessite un traitement des gaz adapté, générant à son tour un volume d'effluents significatif. De plus, la présence de ces radionucléides pourrait compliquer les opérations de séparation et de purification du tritium. Ainsi, il peut être considéré que ce procédé induirait des risques potentiels relativement élevés si celui-ci était mis en œuvre dans le seul objectif de diminuer les rejets de tritium dans l'environnement.

5|1|2 Procédés pyrométallurgiques

Les procédés pyrométallurgiques regroupent des techniques de conversion et de séparation des actinides tels que la calciothermie, la précipitation fractionnée dans les chlorures fondus, l'extraction liquide/liquide entre un sel fondu et un métal liquide ou encore la séparation électrolytique dans les halogénures fondus (chlorures ou fluorures).

²² La technique de distillation sous vide a déjà été utilisée pour récupérer le tritium contenu dans l'eau lourde tritiée des réacteurs de puissance de la filière CANDU au Canada et du réacteur de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble, ainsi que dans le modérateur du réacteur Orphée à Saclay. Elle a également été testée à l'échelle du laboratoire dans l'usine de traitement de combustibles usés Eurochemic (Belgique) [4][5][38].

Les deux dernières techniques séparatives font actuellement l'objet de nombreuses études à l'échelle du laboratoire dans le cadre notamment des recherches sur la séparation/transmutation des actinides, la séparation électrolytique en milieu de chlorures fondus ayant été en particulier déjà appliquée au traitement de quelques centaines de kg de combustibles métalliques RNR aux Etats-Unis et en Russie [35].

Ces procédés, appliqués au traitement de combustibles UOX, consisteraient, après une éventuelle étape de cisailage ou de dégainage du combustible, à dissoudre ce dernier et à séparer les espèces chimiques présentes dans des sels fondus à des températures pouvant varier de 500 à plus de 1000 °C. La destructuration de l'oxyde d'uranium permettrait ainsi de relâcher le tritium, les gaz rares et les autres produits de fission volatils dans les effluents gazeux du procédé et de récupérer ces différents radionucléides après un traitement adapté. Toutefois, ces procédés pyrométallurgiques nécessitent encore de très nombreux développements et ne pourraient être, en tout état de cause, envisagés que dans le cadre de futures usines de traitement associées aux réacteurs de quatrième génération.

5|1|3| Procédé TRILEX

Ce procédé, déjà partiellement mis en œuvre dans les usines de La Hague, consiste, outre l'établissement d'un « barrage tritium » au niveau du premier cycle d'extraction (cf. ci-dessus), à limiter au maximum les ajouts d'eau fraîche dans la zone tritiée de l'usine par l'utilisation de réactifs anhydres ou en solution aqueuse concentrée et le recyclage en tête d'usine d'une quantité maximale d'acide tritié provenant de l'unité de récupération de l'acide tritié.

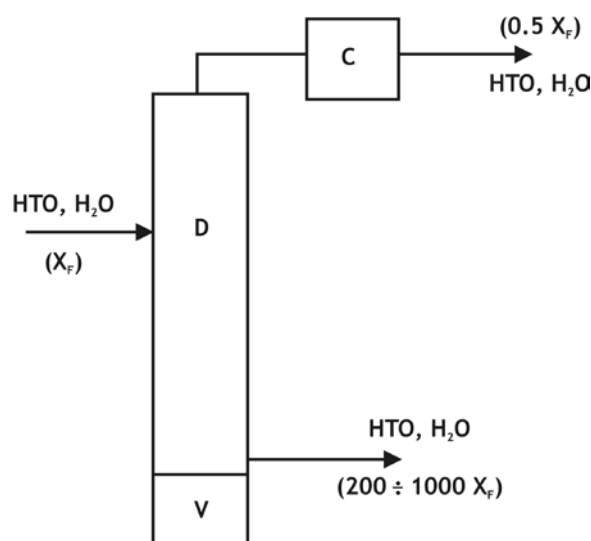
Ce mode de fonctionnement permet ainsi de minimiser le volume d'eau tritiée extrait du procédé et de le rendre compatible avec un procédé de séparation isotopique [36]. Toutefois, l'obtention d'une réduction significative du volume d'effluents à traiter (quantité minimale d'eau introduite dans le cycle comprise entre 500 et 1 000 L.t_U⁻¹ selon les hypothèses retenues [37]) nécessiterait de modifier profondément la conception des usines existantes et entraînerait de fait une augmentation significative de l'inventaire et de la concentration en tritium dans la zone tritiée qui conduirait à une augmentation des risques de rejets de ce radionucléide dans les effluents gazeux et à des risques accrus de contamination des opérateurs, en cas par exemple de perte de confinement des équipements, enceintes ou boîtes à gants (le problème serait a priori similaire pour les autres radionucléides accompagnant le tritium et fonction des facteurs de décontamination obtenus). Les unités de traitement des gaz, nécessaires pour gérer ces risques, génèreraient à leur tour des volumes d'effluents supplémentaires allant à l'encontre des facteurs de réduction visés. De plus, l'accumulation considérable de tritium dans la zone tritiée de l'usine nécessiterait également d'augmenter significativement l'efficacité du barrage tritium.

5|1|4| Distillation sous vide

Ce procédé, déjà accessible industriellement²², est basé sur la différence de volatilité entre les isotopes de l'eau. Le facteur de séparation augmentant lorsque la température diminue, la distillation est généralement effectuée sous vide (facteur de séparation de l'ordre de 1,06 à 50 °C et 100 mbar). Ce facteur reste néanmoins très proche de 1 et nécessite par conséquent un grand nombre d'étages théoriques et un fort reflux. Des essais réalisés à très faible débit (1 L.h⁻¹) au centre d'études de Mol (Belgique) ont permis d'obtenir un facteur de concentration de l'ordre de 1000. Toutefois, le traitement de flux extrêmement dilués nécessiterait des installations de très grande taille et une puissance électrique très élevée. Pour information, les études menées par AREVA [17] indiquent que, pour une usine traitant 1 700 t.an⁻¹ de combustibles, l'unité de distillation qui serait nécessaire au traitement du flux de tritium (de l'ordre de 10⁸ Bq.L⁻¹) devrait comporter un nombre de colonnes de diamètre 4 m équivalent à une hauteur totale de plus de 300 m, soit plus

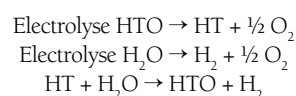
de 4 000 m³ de garnissage, et conduirait à une consommation énergétique très élevée de l'ordre de 130 MW. De plus, le matériau de garnissage utilisé (cuivre oxydé) est sensible aux impuretés ioniques et organiques, ce qui nécessite une décontamination préalable des effluents liquides tritiés à traiter, et doit être périodiquement renouvelé. Ces données de dimensionnement rendent par conséquent cette technologie très onéreuse et difficile à mettre en œuvre aussi bien pour les usines de traitement actuelles que pour les réacteurs REP, ceci malgré sa maturité et le fait qu'elle n'induit pas, en particulier, de risque d'explosion (pas d'utilisation ou de production de dihydrogène sous forme gaz) contrairement à la plupart des autres procédés de séparation.

Schéma de principe de la distillation d'eau tritiée
C - condenseur, D - colonne de distillation, x_F - fraction molaire d'eau tritiée dans le flux d'alimentation



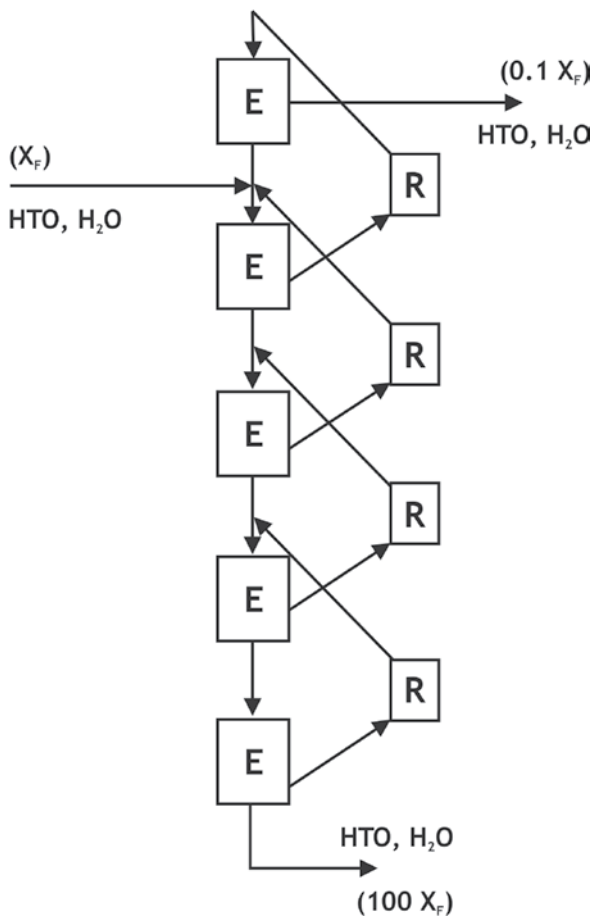
5|1|5| Electrolyse directe

La séparation du tritium par électrolyse directe de l'eau, qui aboutit à sa décomposition en dioxygène et dihydrogène gazeux (O₂ et HT/H₂), est basée sur la différence de tension d'électrolyse et de diffusion des ions dans l'électrolyte, de fortes densités de courant étant nécessaires :



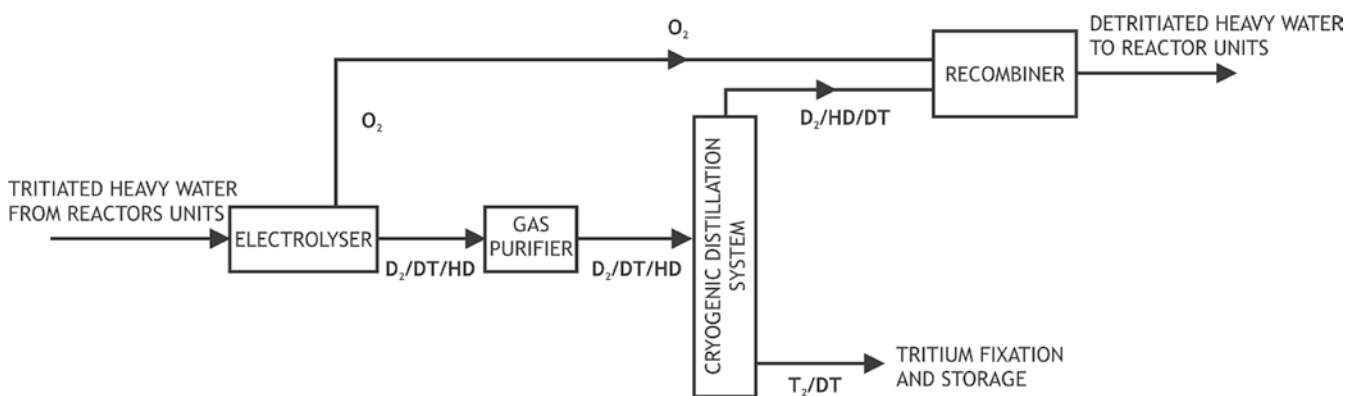
Les formes moléculaires légères migrent plus rapidement dans l'électrolyte et sont préférentiellement réduites à la cathode, l'électrolyte s'enrichissant ainsi progressivement en tritium et le flux de dihydrogène produit s'appauvrissant en ce même radioisotope. Plusieurs étages avec recombinaison des phases gazeuses (HT/H₂ et O₂) sont nécessaires pour obtenir un enrichissement suffisant, l'électrolyte étant régénéré lorsque la teneur en tritium devient trop élevée.

Les facteurs de séparation obtenus, fonction des écarts de masse atomique entre les espèces réduites à la cathode et migrantes dans l'électrolyte, dépendent du type d'électrolyseur utilisé (électrolyseur alcalin, à membrane...) et ne dépassent pas quelques unités, les capacités de traitement éprouvées variant de quelques L.h⁻¹ à quelques centaines de L.h⁻¹ [4][5][38]. L'utilisation d'électrodes bipolaires a été également envisagée (elles évitent tout dégagement gazeux et permettent, en très peu d'étages, d'obtenir un facteur de concentration du tritium proche de 1000 [39]), cette technologie restant néanmoins complexe à mettre en œuvre.



L'électrolyse directe peut également être couplée à une étape de distillation cryogénique (séparation des isotopes de l'hydrogène entre 20 et 25 K), le flux de dihydrogène gazeux appauvri en tritium récupéré étant recombéné avec l'oxygène généré dans la cellule d'électrolyse pour former de l'eau détritée et le flux gazeux enrichi en tritium étant récupéré pour immobilisation, entreposage ou stockage.

Electrolyse directe couplée à un système de distillation cryogénique (exemple de la détritiation de l'eau lourde)



Compte tenu de sa relative complexité, des faibles capacités de traitement, des coûts de mise en œuvre élevés, du fait notamment de la consommation énergétique, et des risques spécifiques induits par ce type de procédé (risques d'incendie et d'explosion liés au dihydrogène produit) ou propres à la plupart des procédés de séparation et de reconcentration (inventaire élevé en tritium pouvant conduire à des rejets importants en cas d'accident...), l'électrolyse directe ne paraît pas à l'heure actuelle adaptée au traitement de flux d'effluents tritiés de plusieurs dizaines de milliers de $m^3 \cdot an^{-1}$.

5|1|6| Procédés d'échanges chimiques

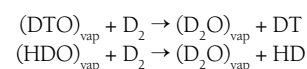
Les procédés d'échanges chimiques, principalement développés pour la production et la purification d'eau lourde et, plus récemment, pour le traitement des effluents tritiés produits par les unités de traitement des gaz des réacteurs à fusion, comprennent deux étapes principales : transfert du tritium présent dans l'eau lourde ou l'eau légère tritiée (DTO ou HTO) vers un flux de dihydrogène gazeux (DT ou HT) circulant à contre courant en présence d'un catalyseur à base de platine (loi d'action de masse), suivi d'une étape de séparation et de concentration du tritium gazeux utilisant le plus souvent la distillation cryogénique.

Plusieurs technologies ont été développées sur ce principe [4][5][38] :

- le procédé VPCE (Vapor Phase Catalytic Exchange) ;
- le procédé LPCE (Liquid Phase Catalytic Exchange) ;
- le procédé CECE (Combined Electrolysis-Catalytic Exchange).

Le procédé VPCE, développé par le CEA, est une des premières technologies d'échange catalytique à avoir été éprouvée à l'échelle industrielle. Il a été tout d'abord mis en œuvre pour détritier l'eau lourde du réacteur à « haut flux » (RHF) de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble, associé à une distillation cryogénique, puis a été utilisé à plus grande échelle dans l'installation de récupération du tritium du site de Darlington au Canada (Tritium Removal Facility - TRF).

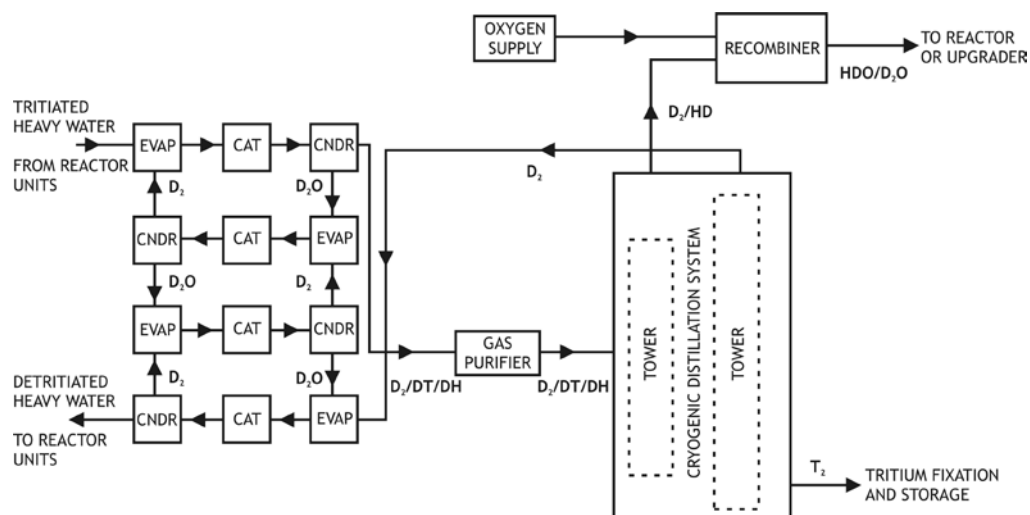
Ce procédé fonctionne à contre-courant, plusieurs cycles d'évaporation-condensation étant nécessaires. Il peut comprendre entre 3 et 8 étages théoriques, chaque étage étant constitué d'un évaporateur, d'un surchauffeur, d'un réacteur catalytique et d'un condenseur. L'eau lourde tritiée est introduite dans l'évaporateur du premier étage, la vapeur formée étant mélangée avec le deutérium froid refluant de l'étage suivant. Le mélange est ensuite réchauffé à 200 °C avant d'être introduit dans le réacteur catalytique sous une pression de 1,2 bar, pour éviter la condensation de la vapeur pouvant saturer les sites du catalyseur. Le deutérium gaz, enrichi préférentiellement en tritium selon les réactions équilibrées ci-dessous, est ensuite séparé de l'eau lourde dans le condenseur puis purifié avant d'alimenter la colonne de distillation cryogénique (séparation des isotopes HD/D₂/DT/T₂ réalisée sous 2 bar). L'eau lourde recondensée, appauvrie en tritium, alimente à son tour l'évaporateur de l'étage suivant. Le gaz de deutérium détritifié alimentant le dernier étage provient de l'unité de distillation cryogénique.



Le principal inconvénient de ce procédé réside dans le fait que les réactions d'échange catalytique s'effectuent en phase gazeuse homogène, les facteurs de séparation obtenus étant relativement faibles, de l'ordre de quelques unités. De plus, un des principaux risques liés à ce procédé est le risque d'explosion dû à la présence de dihydrogène en phase gazeuse

sous forme d'hydrogène, de deutérium et de tritium, pouvant être mis en contact accidentellement avec l'oxygène. A titre d'exemple, pour le RHF, la teneur en tritium du flux d'eau lourde à traiter était de l'ordre de 8.10^{10} Bq.L⁻¹ pour un débit d'alimentation de 20 L.h⁻¹, celle de l'eau lourde détritée étant de l'ordre de 2.10^{10} Bq.L⁻¹. Par ailleurs, la capacité de traitement de l'installation TRF de Darlington est de 2 500 m³.an⁻¹ pour une activité en tritium récupérée de $7,4.10^{17}$ Bq.an⁻¹ et reste encore très éloignée des capacités requises pour traiter les flux d'effluents liquides tritiés produits par les réacteurs REP et les usines de traitement de combustibles.

Schéma de principe du procédé VPCE appliqué au cas de la détritiation de l'eau lourde
EVAP - évaporateur et surchauffeur, CAT - échangeur catalytique, CNDR - condenseur



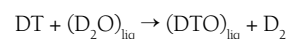
Le développement de catalyseurs hydrophobes à base de platine par AECL, gardant leur efficacité en phase liquide, a permis de simplifier de façon importante ce type de procédé en réduisant considérablement la taille des installations. Ainsi, le mécanisme de détritiation du procédé LPCE s'appuie sur le même principe que celui du procédé VPCE, à ceci près que le transfert du tritium vers le deutérium gazeux peut s'effectuer directement à partir de la phase liquide. Les principaux avantages de ce procédé sont qu'il peut être mis en œuvre dans une simple colonne de lavage à garnissage hydrophile (pour faciliter l'échange de l'hydrogène entre la vapeur d'eau et l'eau liquide), dans des conditions proches des conditions normales (50 °C, pression atmosphérique), et qu'il permet d'obtenir des facteurs de séparation plus élevés que ceux obtenus avec le procédé VPCE [40]. D'autres pays (Inde, Corée, Russie, Etats-Unis...) ont, depuis, développé le même type de catalyseurs hydrophobes. Ce procédé a été notamment mis en œuvre dans l'unité de purification du fluide modérateur des réacteurs CANDU de la centrale de Wolsong (Corée), où des facteurs d'épuration de l'ordre de 35 ont été atteints. Toutefois, la sensibilité du catalyseur aux impuretés organiques et inorganiques nécessite en général une décontamination préalable des effluents liquides tritiés à traiter.

Une troisième option (procédé CECE) consiste à combiner l'électrolyse avec le procédé LPCE. Ce procédé, qui a été également développé par AECL, est considéré comme le plus efficace et constitue aujourd'hui la référence pour le traitement des effluents liquides tritiés de l'installation ITER. Il a également été mis en œuvre à l'échelle pilote, au

Japon, sur le site du réacteur Fugen (capacité de traitement de 3,6 L.j⁻¹, facteur de concentration de l'eau tritiée proche de 10 000), ainsi que dans l'installation pilote de production d'eau lourde CIRCE à Hamilton au Canada (capacité de traitement de 1,5 L.h⁻¹, facteur de décontamination en tritium de l'ordre de 30 000). Plus récemment, des facteurs de séparation encore plus élevés, atteignant des valeurs de 50 000, ont été obtenus

lors d'essais de décontamination d'eau lourde dans les laboratoires de Chalk River.

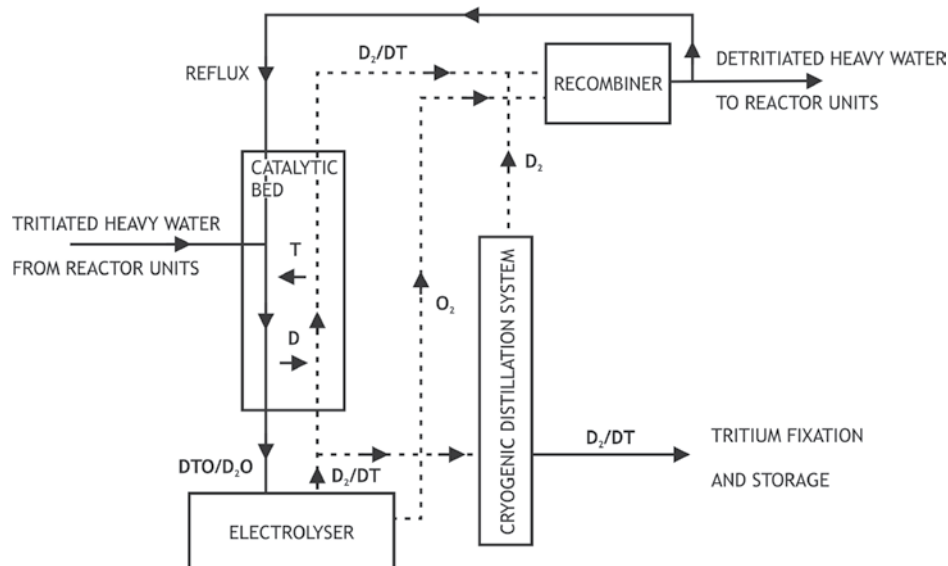
Le flux d'eau lourde tritiée à traiter (D₂O/DTO) est introduit à mi-hauteur de la colonne contenant le lit de catalyseur (platine hydrophobe) et est mis en contact avec le flux ascendant de dihydrogène gazeux (D₂/DT) produit dans la cellule d'électrolyse. L'échange catalytique favorise l'enrichissement de l'effluent liquide en tritium et l'appauvrissement de la phase gazeuse en ce même radioisotope suivant la réaction équilibrée :



Le flux liquide enrichi en tritium est collecté dans la cellule

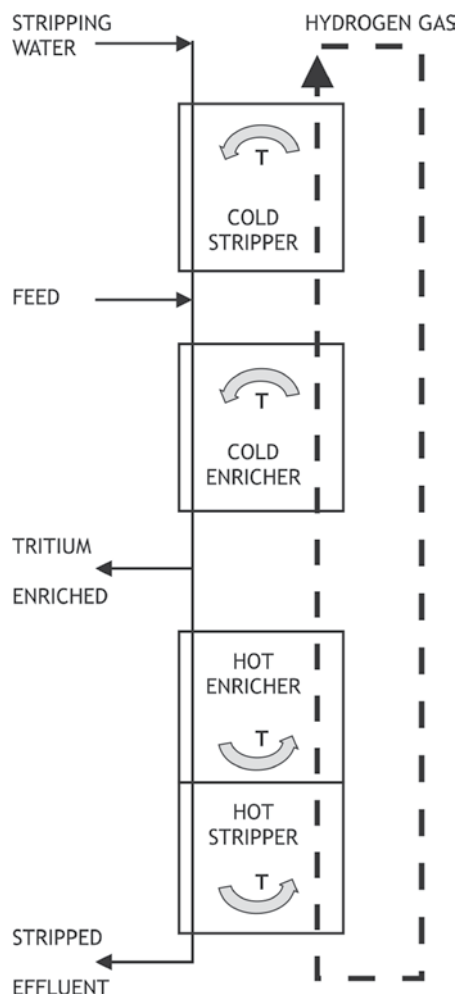
d'électrolyse, l'électrolyte s'enrichissant progressivement en tritium (D₂O étant préférentiellement réduit à la cathode). Une fraction du mélange DT/D₂ produit par électrolyse est dirigée vers la colonne de distillation cryogénique pour séparation du tritium, le deutérium appauvri en tritium récupéré étant recombéné avec l'oxygène généré dans la cellule d'électrolyse en eau lourde détritée recyclée au niveau du réacteur. Une fraction de cette eau retourne également en tête de la colonne catalytique pour améliorer encore la décontamination en tritium de la phase gazeuse ascendante, le deutérium en étant pratiquement exempt en sortie.

Le procédé CECE fait actuellement l'objet de nombreux développements, en particulier dans le cadre des recherches sur la fusion, mais ceux-ci n'ont pas encore atteint le stade industriel (études de nouveaux catalyseurs, conception de nouvelles cellules électrolytiques fonctionnant à hautes températures et permettant de réduire la consommation énergétique, optimisation d'autres équipements...). Les principaux inconvénients de ce procédé résident, comme pour les précédents, dans les coûts de fonctionnement liés principalement à la consommation énergétique (les facteurs de séparation élevés obtenus n'ayant pas d'impact sur cette consommation), les risques liés à la présence d'effluents fortement concentrés en tritium nécessitant de disposer de systèmes de confinement éprouvés ainsi que les risques d'explosion liés à la présence de dihydrogène gazeux. Par ailleurs, le procédé CECE mis en œuvre uniquement à l'échelle pilote, reste de fait encore difficilement applicable au traitement d'un flux d'effluents tritiés de plusieurs dizaines de milliers de m³.an⁻¹.



Le procédé bitherme faisant intervenir le couple eau-hydrogène, également utilisé pour la détritiation de l'eau lourde (prototype CIRCE à Hamilton, Canada), est basé sur le même principe d'échange catalytique que le procédé CECE, mais ne nécessite pas d'électrolyser le flux d'effluents tritiés à traiter. Son principe est basé sur le recyclage permanent d'un flux d'hydrogène au travers de deux colonnes de séparation couplées, comportant chacune une zone d'enrichissement et une zone d'appauvrissement et fonctionnant sous pression (50 bar), l'une à 170 °C, l'autre à 50 °C. Les risques liés à ce procédé (confinement, explosion) sont néanmoins beaucoup plus délicats à appréhender du fait que les équipements fonctionnent sous haute pression.

Schéma de principe du procédé bitherme eau-hydrogène



Enfin, le procédé Girdler-Sulphide [41], basé sur le même principe d'échange chimique, mais faisant intervenir cette fois l'eau et l'hydrogène sulfureux ($\text{H}_2\text{S} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{S} + \text{HDO}$), est mis en œuvre sous une pression de l'ordre de 20 bar dans des colonnes de températures différentes. Ne nécessitant pas l'utilisation de catalyseur, ce procédé ne conduit pas à des installations de taille importante, mais engendre, toutefois, des risques élevés d'explosion et de perte de confinement liés aux pressions mises en œuvre, l'hydrogène sulfureux étant également très toxique et corrosif. Ceci semble rendre réductible l'extrapolation de ce procédé à une plus grande échelle.

5.1.7 | Autres procédés

De nombreux autres procédés de séparation du tritium ont été étudiés et sont encore en développement sans avoir franchi le stade industriel. Certains d'entre eux peuvent présenter des facteurs de séparation très élevés, mais ne peuvent être mis en œuvre, pour l'instant, que pour le traitement de très faibles quantités d'effluents tritiés [4] [34] :

- séparation sur résines modifiées : ce procédé, développé par la société MSI [42], utilise des résines échangeuses d'ions sélectives fixant préférentiellement l'eau tritiée, ces résines devant toutefois être régénérées par chauffage à haute température (jusqu'à 150-160 °C) dès saturation. L'eau tritiée présente dans les gaz ainsi produits est piégée sur des tamis moléculaires ou recondensée. Ces résines nécessitent également de purifier les solutions à traiter pour assurer des capacités d'adsorption correctes ;
- séparation sur membranes perméables : ce procédé de séparation isotopique, développé notamment dans le cadre des recherches sur la fusion, nécessitent un fonctionnement en cascades ;
- thermodiffusion : lorsqu'un mélange de dihydrogène gazeux (H_2 , HT, T_2) est placé dans un champ de température, les molécules de masses moléculaires les plus faibles (H_2) migrent vers la paroi chaude et celles ayant les masses les plus lourdes (T_2) migrent vers la paroi froide, créant ainsi un gradient de concentration (transport de matière lié aux forces intermoléculaires) ;
- séparation isotopique par laser : procédé basé sur la photodissociation de molécules tritiées induite par laser ;
- ...

5.1.8 | Conclusion sur l'évaluation des procédés de séparation et de récupération du tritium

En résumé, aucun des procédés de séparation isotopique existants décrits ci-dessus, mis en œuvre à l'échelle pilote, voire pré-industrielle, n'a été conçu et exploité à une échelle et avec des performances visées comparables à celles requises pour le traitement des effluents liquides tritiés produits par les usines de traitement de combustibles usés et les réacteurs de type REP. En effet, ces procédés ont été conçus uniquement pour des flux limités (facteur d'échelle pouvant varier de 50 à 1000) et pour des concentrations en tritium élevées (au moins 1000 fois supérieures à celles des effluents des usines de traitement et des réacteurs nucléaires) et n'ont, pour la plupart, pas encore été qualifiés et éprouvés à l'échelle industrielle. L'application de ces procédés aux réacteurs et aux usines nécessiterait par conséquent le développement et la mise en œuvre d'équipements de tailles très importantes, associés à une très forte consommation d'énergie (distillation sous vide, électrolyse, prétraitement nécessaire pour atteindre un niveau de pureté suffisant des effluents à traiter...).

De plus, ces procédés conduiraient à une augmentation notable des risques, liée notamment à l'augmentation de la concentration et de l'inven-

taire en tritium manipulé dans l'installation et à la présence de dihydrogène gazeux ou de réactifs toxiques et corrosifs, parfois mis en œuvre dans des conditions de températures et de pression élevées. Ainsi, ces sources de danger pourraient conduire, en fonctionnement normal, à une augmentation des rejets gazeux pouvant engendrer une augmentation de l'impact du site sur les groupes de référence et, en cas de perte accidentelle du confinement ou d'explosion, à des rejets significatifs de tritium sous forme gazeuse dans l'environnement.

Par ailleurs, il faut également tenir compte du risque d'augmentation des doses pour les travailleurs liées aux éventuels travaux de modification des installations existantes et à l'exploitation des nouvelles unités de séparation et de concentration du tritium (augmentation des risques d'exposition par inhalation, pénétration cutanée...), ces contraintes pouvant avoir une incidence forte sur la conception de ces unités et sur les procédures opératoires (manipulation à distance, ventilation/détritiation, protection individuelle, limitation de la concentration en tritium dans les flux à traiter...).

Enfin, les procédés visant à extraire le tritium du combustible irradié en tête du procédé de traitement sont encore au stade du développement en laboratoire, la plupart nécessitant des sauts technologiques importants, et ne pourraient être envisagés a priori que dans le cadre de la conception d'usines futures. L'entreposage des effluents liquides tritiés permettant la décroissance radioactive du tritium avant rejet semble également difficilement envisageable compte tenu des volumes en jeu et de la durée d'entreposage nécessaire.

5|2| Evaluation des procédés d'immobilisation et de conditionnement

Même si un entreposage direct du tritium sous forme liquide ou gazeuse, en conteneurs ou bouteilles étanches, reste une solution envisageable afin de réduire l'activité volumique du tritium par simple décroissance radioactive, sous réserve d'évaluer précisément les risques associés (confinement supplémentaire à apporter, garantie du maintien de l'étanchéité des bouteilles dans le temps tenant compte de la production d'hélium, des phénomènes de radiolyse, de fragilisation des aciers et de corrosion...), l'immobilisation du tritium sous la forme d'une matrice stable et résistante aux agressions (de types mécanique, chimique, thermique, liés aux rayonnements...), capable d'assurer la rétention de ce radionucléide sur une période de temps suffisante en vue d'un entreposage ou d'un stockage, n'en demeure pas moins une option qu'il convient d'étudier.

Le choix du mode de conditionnement du tritium dépend de la forme physique sous laquelle il a été concentré (gaz ou liquide) et de son activité spécifique. Les principales voies étudiées concernent les adsorbants solides (agents déshydratants), les liants hydrauliques (mortiers à base de ciment), les polymères organiques et les hydrures métalliques [4][6].

5|2|1| Les adsorbants solides

La famille des adsorbants solides regroupe principalement le silica gel, l'alumine activée, le sulfate de calcium, les tamis moléculaires et les zéolithes. Ces matériaux, avides d'humidité, sont notamment utilisés pour récupérer et piéger la vapeur d'eau tritiée présente dans l'air ou dans d'autres types de gaz, la quantité d'eau incorporée pouvant varier de 10 à 40 % environ. Parmi ces adsorbants, le silica gel, les tamis moléculaires et les zéolithes, particulièrement stables, présentent les meilleures propriétés de rétention, ce paramètre variant néanmoins avec le taux de chargement du matériau.

Le tritium peut également être récupéré par circulation d'un flux d'air sec à haute température, les propriétés de ces adsorbants n'étant pas altérées significativement par les conditions de régénération (cas notamment de la zéolithe). Toutefois, un conditionnement de ces matériaux en conteneurs étanches serait nécessaire dans le cadre d'un entreposage

sur une durée de plus d'une centaine d'années, voire d'un stockage, pour éviter tout contact éventuel avec l'eau pouvant conduire à un relâchement d'une fraction de l'activité contenue (les taux d'échange maximum du tritium avec ce vecteur sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-4} j⁻¹) et pour tenir compte de l'effet éventuel du vieillissement sur les propriétés de ces adsorbants.

De plus, ces conteneurs de « haute intégrité » et à « haut pouvoir confinant » devraient être dimensionnés à la corrosion et aux hautes pressions dues à l'hélium produit par décroissance radioactive du tritium (1 g de tritium génère 7 L d'hélium gaz). Ces exigences rendent particulièrement coûteuse la mise en œuvre d'un tel conditionnement, l'enrobage dans un liant hydraulique ou un polymère organique pouvant également constituer une alternative (cf. ci-après). De fait, ces agents déshydratants sont davantage adaptés à l'immobilisation et au transport de petites quantités de tritium fortement concentrées, destinées à être recyclées (voir notamment le retour d'expérience du centre CEA de Valduc).

5|2|2| Les liants hydrauliques à base de ciment

Les mortiers à base de ciment (classification selon la teneur en chaux, silice et alumine) peuvent constituer une deuxième option pour conditionner les effluents liquides tritiés, l'objectif étant d'obtenir un matériau solide, homogène, compact et stable et assurant sur un laps de temps suffisant le confinement du tritium, avant stockage du colis.

Le choix du liant hydraulique est fonction en général de son niveau de compatibilité avec les effluents ou les déchets à enrober, de sa capacité chimique d'hydratation, de son durcissement, de son niveau de retrait thermique et hydraulique, de son comportement à la température, aux rayonnements ionisants, à la corrosion et à l'érosion et de sa résistance à la lixiviation. Toutefois, il faut rappeler que, de par ses caractéristiques, le tritium diffuse facilement au travers des matrices cimentées. Certaines matrices, fabriquées par exemple à base de ciment Portland, peuvent néanmoins présenter un taux de rétention plus important du tritium.

Par ailleurs, la résistance mécanique et la résistance aux agressions chimiques des colis dépendent notamment de la quantité d'eau incorporée au ciment (le rapport eau/ciment étant en général compris entre 0,3 et 0,5), le relâchement de tritium, sous forme d'eau tritiée, de colis entreposés en atmosphère humide pouvant atteindre 25 % de l'inventaire initial, dès les premières semaines suivant la fabrication.

Des essais de lixiviation réalisés sur différents types d'enrobés montrent également que le taux de relâchement du tritium est en moyenne de l'ordre de 10^{-2} durant le premier mois, ce taux diminuant ensuite avec le temps. A cet égard, des études ont montré que l'application d'une couche d'imprégnation sur la surface du colis (voire un sur-enrobage), par exemple à base de résines époxyde, pouvait améliorer la capacité de rétention du tritium. Une diminution drastique du taux de relâchement de ce radionucléide ne pourrait toutefois être obtenue que si le colis est associé à un conteneur étanche en acier dont les caractéristiques seraient adaptées aux contraintes de l'entreposage ou du stockage (corrosion, pression...) et dont la durée de vie serait au moins de l'ordre d'une centaine d'années.

Enfin, pour ce qui concerne la sûreté du procédé d'enrobage, les dispositions visant à confiner le tritium éventuellement dégagé pendant la coulée et la prise du ciment doivent également être évaluées avec soin, notamment pour ce qui concerne le traitement des gaz de ventilation du procédé.

5|2|3| Les polymères organiques

Les polymères organiques dans lesquels le tritium est lié au carbone sont susceptibles d'immobiliser le tritium compte tenu de leurs stabilités chimiques, de leurs faibles tensions de vapeur et de leurs propriétés

hydrophobes. Les polymères couramment étudiés, à base d'acétylène, sont les polyacétylènes, les bakélites, les polyacrylonitriles et les polyacrylates. Les polystyrènes sont également cités.

Les tests de lixiviation réalisés sur la plupart de ces polymères au contact de l'eau montrent que les taux de relâchement en tritium peuvent s'avérer importants (jusqu'à 5 % de l'inventaire initial relâché en quelques jours). De plus, la complexité et les risques associés à ce type de procédé ne semblent pas adaptés au conditionnement de flux importants d'effluents tritiés concentrés.

5|2|4| Les hydrures métalliques

Le tritium gaz peut former des hydrures métalliques avec de nombreux métaux, mais seul un certain nombre d'entre eux sont suffisamment stables, en particulier lorsqu'ils sont mis en contact avec l'air ambiant ou avec l'eau, et possèdent une pression de dissociation suffisamment faible pour garantir l'immobilisation du tritium et son absence de relâchement durant toute la durée de l'entreposage. Les hydrures de zirconium et de titane sont, dans ce contexte, particulièrement étudiés, le choix du type de métal étant fonction des conditions d'entreposage ou de stockage. A titre d'exemple, les taux de relâchement des hydrures de zirconium et de titane au contact de l'eau sont très faibles, de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-9} j^{-1} , la fraction de tritium relâchée au bout de 600 jours étant inférieure à 0,05 % de l'inventaire initial.

Les hydrures peuvent être obtenus par chargement du métal par voie gazeuse (mélange argon-hydrogène sous pression) à des températures de l'ordre de 400 °C (des techniques par chargement électrolytique ont été également développées). La technique de chargement par voie gazeuse nécessite toutefois l'emploi de réactifs purs, la présence d'hélium ou d'oxygène pouvant en particulier ralentir, voire inhiber, la réaction de formation de l'hydruire. A l'inverse, le tritium peut être récupéré par chauffage du métal hydruré sous vide (à plus de 800°C pour le zirconium).

Par ailleurs, la capacité de piégeage du tritium par ces métaux peut être relativement importante. A titre d'exemple, les hydrures de zirconium purs correspondent à 18 g d'atomes d'hydrogène ou 50 g d'atomes de tritium par kg de zirconium. Dans des conditions de chargement « normales », des teneurs de l'ordre de 1000 ppm d'atomes d'hydrogène (soit 3000 ppm d'atomes de tritium) sont couramment atteintes. Ainsi, sur un plan théorique, quelques dizaines de kg de zirconium suffiraient pour piéger la totalité du tritium rejeté annuellement par les usines de La Hague (soit au maximum 50 g par an). Toutefois, la mise en œuvre de ces techniques reste complexe (hautes températures), le taux et le temps de chargement dépendant principalement de la surface d'échange et de l'état de surface du métal.

L'entreposage sur des durées de l'ordre d'une centaine d'années (ou le stockage direct) de ces hydrures nécessiterait, en tout état de cause, de les conditionner dans des conteneurs en acier de haute intégrité, notamment pour éviter tout contact avec l'eau et pour tenir compte de l'effet éventuel du vieillissement sur les propriétés de ces composés, de la même manière que pour les adsorbants solides. Enfin, il faut rappeler que le piégeage du tritium, sous forme d'hydrures métalliques, nécessiterait au préalable d'électrolyser l'intégralité des effluents tritiés produits par les réacteurs et les usines de traitement, pour récupérer ce radionucléide sous forme de gaz (HT ou T_2), cette opération conduisant à une forte consommation d'énergie et induisant notamment des risques d'explosion. De plus, les risques liés au caractère pyrophorique des hydrures devraient également être évalués avec soin. De fait, les hydrures métalliques semblent pour l'instant, comme pour les adsorbants solides, davantage adaptés à l'immobilisation et au transport de petites quantités de tritium, destinées à être recyclées.

5|2|5| Conclusion sur les procédés d'immobilisation

En conclusion, parmi les différents modes possibles de conditionnement du tritium, les adsorbants solides (tamis moléculaire, zéolithes...) et les hydrures métalliques (zirconium, titane...) semblent les plus pro-

metteurs compte tenu de leur stabilité (maintien des performances) à court et moyen terme, de leurs capacités de rétention et de leurs taux de relâchement relativement faibles lorsqu'ils sont mis en contact avec l'air ou l'eau, mais également de la possibilité de régénérer ces supports solides en récupérant (et valorisant) le tritium piégé. Un conditionnement de ces matériaux (et le cas échéant des déchets secondaires produits) en conteneurs étanches serait toutefois nécessaire pour résister aux différents types d'agressions envisageables en situation d'entreposage (voire de stockage) sur une durée de plus d'une centaine d'années, l'effet du vieillissement à long terme pouvant en particulier modifier le taux de dégazage de ces supports.

En tout état de cause, ces techniques ne sont actuellement pas éprouvées pour l'immobilisation de quantités importantes de tritium sous forme d'eau tritiée concentrée ou de dihydrogène gazeux, des développements technologiques importants étant encore nécessaires.

Par ailleurs, comme pour les unités de séparation et de concentration du tritium, il faudrait également tenir compte des risques d'augmentation des doses pour les travailleurs liées aux éventuels travaux de modification des installations existantes et à l'exploitation des nouvelles unités de conditionnement et d'entreposage des déchets tritiés produits.

6| Conclusion générale

La question des rejets de tritium des installations nucléaires conduit à examiner la pertinence des modes de gestion des effluents et des déchets solides contenant du tritium et, corrélativement, l'intérêt et les moyens de réduire les rejets dans l'environnement de ce radionucléide. Cet examen nécessite de considérer trois éléments : la nature de l'effluent (liquide ou gazeux), les facteurs qui gouvernent l'impact environnemental de ces rejets et l'efficacité des moyens qui peuvent être mis en œuvre pour capturer et confiner le tritium.

L'analyse globale de ces éléments conduit à distinguer la gestion des liquides peu concentrés, mais en très grands volumes, le traitement des effluents gazeux et l'entreposage et le stockage des déchets.

- **Les effluents liquides** qui proviennent de l'exploitation des réacteurs nucléaires et du traitement de combustibles usés sont aujourd'hui la source la plus importante de rejet de tritium dans l'environnement. Leur faible concentration en tritium et leurs volumes très élevés (plusieurs dizaines de milliers de m^3 par an et par installation) sont un obstacle à la mise en œuvre de procédés de récupération de ce radioélément, suffisamment efficaces, sûrs et viables économiquement. Il faut toutefois noter que l'environnement dans lequel les rejets sont effectués (mer, fleuves) permet une dilution supplémentaire extrêmement importante du tritium et une réduction consécutive de son impact à des niveaux extrêmement faibles, en général inférieurs au μSv par an.
- **Les effluents gazeux** se prêtent mieux à un traitement avant rejet permettant la capture du tritium sous forme d'eau tritiée concentrée, comme les procédés mis en œuvre par le CEA ont pu le démontrer. Compte tenu du fait que l'environnement terrestre dans lequel s'effectuent les rejets gazeux ne possède pas la capacité de dilution de l'environnement marin, le recours à la détritiation de ces effluents peut être d'autant plus utile qu'outre la possibilité de valoriser le tritium récupéré, il permet une réduction significative de l'impact radiologique associé à ces rejets. La quantité produite d'effluents tritiés concentrés doit toutefois demeurer faible, du fait des difficultés posées par sa gestion sûre, et constitue sans doute un facteur limitant au déploiement de telles techniques.
- Enfin, **l'entreposage et le stockage de déchets tritiés solides**, dont certains ont pu faire l'objet d'une détritiation préalable, apportent des solutions de confinement du tritium contenu, mais ce confinement n'est pas absolu. En effet, les entreposages induisent généralement des rejets de tritium dans l'atmosphère et des rejets diffus dans le sol ne peuvent pas totalement être évités dans le cas des stockages.

Il ne peut donc pas être envisagé, au moyen des techniques actuellement disponibles, de récupérer et de confiner totalement le tritium présent dans les effluents des installations existantes. Dès lors, les opérations

entreprises pour traiter des effluents ou des déchets tritiés dans une installation donnée, vont s'accompagner d'un déplacement du risque vers d'autres installations, en termes de rejet et d'impact pour les travailleurs et l'environnement. Ce déplacement du risque doit être évalué globalement pour apprécier la pertinence des modes de gestion des effluents et des déchets tritiés qui pourront être mis en œuvre à l'avenir.

En tout état de cause, au regard de la loi TSN du 13 juin 2006, il incombe aux exploitants des installations nucléaires rejetant des radionucléides de poursuivre leurs efforts en matière de maîtrise et de diminution des rejets. Par conséquent, ceux-ci devront tenir compte des évolutions technologiques en cours ou à venir, notamment dans le cadre de la conception de nouvelles installations, permettant de réduire au mieux les rejets tout en maîtrisant les risques associés aux nouveaux procédés mis en œuvre et à la gestion des déchets induits, afin de définir les stratégies les plus favorables en terme de sûreté et de radioprotection.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (2000)
- [2] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (1993)
- [3] ELECNUC, Les centrales nucléaires dans le monde, Edition 2008, Institut de technico-économie des systèmes énergétiques, CEA/DEN
- [4] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Management of Waste Containing Tritium and carbon-14, Technical Reports Series n°421, IAEA, Vienna (2004)
- [5] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Handling of Tritium-Bearing Wastes, Technical Reports Series n°203, IAEA, Vienna (1981)
- [6] McKAY, H.A.C., "Background considerations in the immobilization of volatile radionuclides", Management of Gaseous Wastes from Nuclear Facilities (Proc. Int. Symp. Vienna 1980), IAEA, Vienna (1980) 59-78
- [7] B. LE GUEN, Impact du tritium autour des centrales nucléaires EDF, Radioprotection 2008, Vol. 43, n°2, pages 177 à 191, EDP Sciences
- [8] B. LE GUEN, V. CHRETIEN, « Rejets de tritium et impact autour des CNPE d'EDF », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [9] HOLTSLANDER, W.J., TSYPLENKOV, V., "Management of tritium at nuclear facilities", Radioactive Waste Management (Proc. Int. Conf. Seattle, WA, 1983), Vol. 2, IAEA, Vienna (1984) 191-204
- [10] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (1988)
- [11] UNITED NATIONS, Sources and Effects of Ionizing Radiation (Report to the General Assembly), Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), UN, New York (1982)
- [12] W. KUNZ, H. MUNZEL and U. HELFRICH. J. Nucl. Mater. 105 (1982), p. 178
- [13] J.J. KEARNS. J. Nucl. Mater. 43 (1972), p. 330
- [14] P. THOMPSON, « Problématique de la gestion du tritium au Canada : le point de vue des autorités », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [15] Mc GUIRE, J.C. and RENNERT, T.A., Control of tritium in liquid metal cooled fast breeder reactors, Atomic energy review, 16 (4) 1978 pp 657-695
- [16] M. CARMINATTI, N. S. MORRISON, « Hydrogen and tritium behaviour in Phenix and PFR », 4ème conférence internationale sur la technologie des métaux liquides, 17-21 octobre 1988, Avignon (LIMET 88)
- [17] P. DEVIN, « Gestion des rejets de tritium du site AREVA NC de La Hague, impact et surveillance associés », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [18] GRNC, Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Rapport de synthèse « Estimation des niveaux d'exposition aux rayonnements ionisants et des risques de leucémie associés de population du Nord-Cotentin » et Volume 1 « Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires », 1999
- [19] GRNC, Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Rapport de synthèse et rapport détaillé « Année 2006 - Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses présentées dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement d'AREVA-NC La Hague », 2008
- [20] Sellafield Ltd Annual Report 2006 - Discharges and Monitoring of the Environment in the UK
- [21] Rapport de surveillance de l'environnement de l'établissement AREVA de La Hague, 2006
- [22] F. LEVY, « Retour d'expérience et perspectives du site de Marcoule », Revue Générale Nucléaire, année 2008, N°1, janvier-février
- [23] P. GUETAT, A. TOGNELLI, L. VICHOT, « Apports de la surveillance du centre CEA/Valduc sur la connaissance des transferts de l'eau tritiée atmosphérique dans les différents compartiments de l'environnement », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [24] D. LETERQ, P. BUSSIERE, « Retour d'expérience du procédé de détritiation de Valduc », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [25] Rapports transparence et sécurité nucléaire (par centre), CEA, 2007 et 2008
- [26] Y. BELOT, Le tritium de l'environnement à l'Homme, IPSN, les éditions de physique
- [27] P. GUETAT, Le tritium et l'environnement : sources, mesures et transferts, Radioprotection 2008, Vol.43, n°4, 547 à 569, EDP Sciences
- [28] S. JENKINSON, « Tritium concentrations around british coasts », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [29] L. RODRIGUEZ-RODRIGO, « La gestion des déchets d'ITER », Colloque ANCCLI Le tritium discret mais présent partout, 4 et 5 novembre 2008, Orsay
- [30] P. CORTES, J. ELBEZ-UZAN, M. GLUGLA, « Optimisation de la gestion du tritium dans le projet ITER », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [31] F. CHASTAGNER, « Difficultés associées au confinement des déchets tritiés », Journées tritium des 23 et 24 septembre 2009, Société Française de radioprotection (SFRP), UIC, Paris
- [32] Dossier 2005 Argile, Evaluation de la faisabilité du stockage géologique en formation argileuse, Décembre 2005, ANDRA
- [33] Inventaire National des Matières et Déchets Radioactifs 2009, ANDRA
- [34] G. VASARU, Tritium isotope separation, CRC Press, 1993
- [35] Le traitement-recyclage du combustible nucléaire usé, Monographie DEN, CEA, Editions Le Moniteur
- [36] Brevet FRA-A-2 230 040, C. BERNARD, Procédé de traitement des combustibles irradiés pour limiter le rejet du tritium dans l'environnement, 1973
- [37] J.P. GOU MONDY, « Maîtrise du tritium dans les usines de retraitement de combustibles REP », Journées tritium des 23-24-25 avril 1986, Société Française de radioprotection (SFRP), Dijon
- [38] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Management of Tritium at Nuclear Facilities, Technical Reports Series n°234, IAEA, Vienna (1984)
- [39] E.H. KOBISH, Separation of tritium from gaseous and aqueous effluent systems, ORNL 77/183
- [40] SEDDON, W.A. and al., Wetproofed Catalysts : A new and effective solution for hydrogen isotope separation and hydrogen/oxygen recombinaison, Rep. AECL-8293, Atomic Energy of Canada Ltd, Chalk River (1984)
- [41] DOE/RL _ 2004-11 Rev.0 2004 Evaluation of Tritium Removal and Migration Technologies for Wastewater Treatment
- [42] Molecular Separation Inc., « Tritium separation technology », paper presented at the EPRI Low Level Waste Conference, July 13, 1999, East Brunswick, NJ, 1999

Le tritium dans l'environnement

Synthèse des connaissances

Contribution collective IRSN/DEI

Coordination : J.C. Gariel

Contributeurs : C. Adam-Guillermine, C. Antonelli, P. Bailly du Bois, K. Beaugelin-Seiller, P. Boyer, B. Fiévet, J. Garnier-Laplace, R. Gurriaran, S. Le Dizes-Maurel, D. Maro, M. Masson, O. Pierrard, P. Renaud, S. Roussel-Debet.

Rapport IRSN/DEI 2009-05

Résumé

Le tritium est un radionucléide d'origine naturelle (inventaire permanent de 3,5 kg à l'échelle planétaire, avec une production naturelle mondiale d'environ 200 g par an) mais aussi largement produit par les activités humaines depuis la seconde moitié du 20^{ème} siècle. En particulier, de grandes quantités de tritium ont été relâchées dans l'atmosphère durant la période des essais aériens d'armes nucléaires, entre 1945 et 1980. Le tritium émis lors des explosions nucléaires est à l'heure actuelle principalement localisé dans les océans, en quantité ayant fortement diminué du fait de la décroissance radioactive. L'industrie nucléaire (réacteurs de puissance, réacteurs expérimentaux, usines de traitement de combustibles irradiés) continue, de manière localisée, à rejeter du tritium dans l'environnement. Aujourd'hui, avec le carbone 14, le tritium est, au niveau français, le radionucléide prépondérant en termes d'activité rejetée par les installations nucléaires, tant dans les rejets liquides que dans les rejets gazeux (hors gaz rares).

D'une manière générale, les activités du tritium en milieu continental tendent à diminuer depuis une quinzaine d'années, ce qui rend aujourd'hui délicate la quantification des marquages imputables aux installations nucléaires. Pour ce qui concerne le milieu marin, le tritium n'est, en l'état des techniques de mesure utilisées aujourd'hui, quantifiable qu'en Manche orientale. La quantification précise des niveaux en tritium dans l'environnement nécessiterait l'utilisation systématique de techniques plus élaborées (par mesure de l'hélium 3).

Le tritium étant un isotope de l'hydrogène, son comportement dans l'environnement est principalement lié au cycle de l'eau (HTO, ou eau tritiée) mais aussi à la photosynthèse et au métabolisme des molécules organiques dans les organismes vivants (tritium organiquement lié (TOL), appelé également OBT).

L'analyse détaillée des données recueillies sur le territoire métropolitain ne met pas en évidence de bioaccumulation dans les végétaux. Il est cependant observé, dans certains cas, une rémanence du tritium lié à des molécules organiques dans des végétaux antérieurement exposés à une

contamination ambiante prolongée. De la même manière, les données relatives aux produits d'origine animale en milieu terrestre, bien que peu nombreuses, ne montrent pas de phénomène de bioaccumulation. En milieu aquatique marin et continental, s'il est acquis que le transfert du tritium de l'eau ambiante aux organismes aquatiques conduit très rapidement à un équilibre entre l'eau tritiée du milieu d'exposition et le tritium libre des tissus biologiques, les échanges mettant en jeu des formes organiques du tritium sont encore méconnus; plus particulièrement chez les poissons marins ou d'eau douce, animaux chez lesquels il existe le plus de données acquises in situ. Pour des invertébrés marins, des facteurs de concentration $OBT_{organisme}/HTO_{eau}$ supérieurs à 1 ont été relevés en diverses situations par des auteurs (cas de la baie de Cardiff notamment) ; ils peuvent s'expliquer par l'origine et la forme physico-chimique du tritium incorporé (ingestion de molécules organiques tritiées).

Enfin, pour ce qui concerne la toxicité du tritium sur les organismes non-humains, il n'existe que des données relatives à des animaux (invertébrés ou vertébrés). Des travaux récents sur des invertébrés ont mis en évidence la grande sensibilité de deux espèces (un mollusque bivalve et un crustacé) à une exposition au tritium. Les débits de dose pour lesquels des effets ont été observés pour ces espèces sont significativement plus faibles que la valeur de 10 $\mu Gy/h$ habituellement considérée comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma. Toutefois, ces niveaux de débit de doses correspondent à des concentrations de tritium dans les milieux nettement plus élevées que celles observées dans l'environnement, y compris autour des installations nucléaires.

Mots-clés

Tritium, déchets tritiés, installations nucléaires, sources, production, gestion, séparation, piégeage, conditionnement, stockage

1 | Introduction

Le tritium est un radionucléide d'origine naturelle mais aussi largement produit par les activités humaines depuis la seconde moitié du 20^{ème} siècle. En particulier, de grandes quantités de tritium ont été relâchées dans l'atmosphère durant la période des essais aériens d'armes nucléaires, entre 1945 et 1980. Aujourd'hui, l'industrie nucléaire (réacteurs de puissance, réacteurs expérimentaux, usines de retraitement) continue, de manière localisée, à rejeter du tritium dans l'environnement. Ainsi, en France, le tritium est un des radionucléides prépondérants en termes

d'activité rejetée par les installations nucléaires, tant dans les effluents liquides que gazeux. Des modifications de certains modes de gestion du combustible des réacteurs actuels, la mise en exploitation de nouveaux réacteurs (notamment l'EPR) ainsi que celle, à moyen terme, de l'installation de fusion ITER devraient conduire, dans les années qui viennent, à une augmentation des rejets de tritium.

Dans ce contexte, des questions sont soulevées sur l'état des connaissances nécessaires à l'évaluation de l'impact environnemental et sanitaire du tritium. Ces interrogations initialement issues de groupes de réflexion

scientifique ou sociétaux (AGIR, 2007 ; CERRIE, 2004 ; Greenpeace, 2007) sont reprises au plan national par les pouvoirs publics, les Commissions Locales d'Information et les associations qui souhaitent pouvoir disposer d'éléments permettant de répondre aux inquiétudes qui se développent face à la prévision d'augmentation des quantités de tritium dans les rejets liquides et les rejets gazeux. Ainsi, l'ASN a mis en place en janvier 2008 deux groupes de réflexion pluralistes, dont l'un s'intéresse plus spécifiquement à l'impact du tritium sur l'environnement et sur l'homme.

Le présent rapport fournit un état des connaissances actuelles sur les origines, les niveaux actuels, le devenir et les effets du tritium au sein des écosystèmes terrestres et aquatiques, en soulignant les manques de connaissances et les domaines les moins documentés. Il a pour objectif d'étayer la réflexion, tant de l'IRSN que des autres parties prenantes, d'une part, sur les enjeux que représente ce radionucléide en termes de comportement dans l'environnement et de risque sur les écosystèmes et, d'autre part, sur les pistes d'études, de recherches ou de développements techniques concernant le tritium dans l'environnement. Pour ce qui concerne l'IRSN, ces réflexions ne sont pas livrées dans le présent rapport mais dans un document séparé.

2 | Propriétés nucléaires et physico-chimiques du tritium

2|1 | Le tritium, isotope radioactif de l'élément hydrogène

Le tritium, symbolisé par ^3H ou T , est l'isotope radioactif de masse 3 de l'élément hydrogène. Il a été découvert en 1934 par Rutherford et identifié par Alvarez en 1937. Sa transformation radioactive, selon une période de 12,32 ans, conduit à un isotope stable de l'hélium (^3He), en émettant un électron (rayonnement β) de faible énergie. Les principales caractéristiques nucléaires du tritium sont répertoriées dans le tableau 2.1. Le rayonnement β émis lors de la transformation radioactive du tritium étant de faible énergie, il est très peu pénétrant (parcours libre moyen dans l'eau inférieur à $1\ \mu\text{m}$) et, de ce fait, ne conduit à aucune irradiation externe des organismes vivants lorsqu'il est dans l'environnement. Par conséquent, l'irradiation d'un organisme ne peut se produire qu'après incorporation du tritium.

Tableau 2.1 - Caractéristiques nucléaires du tritium selon (Unterweger, 2000 ; ICRP, 1983 ; Browne and Firestone, 1986)

Période radioactive	12,32 ans
Activité massique	$3,6 \cdot 10^{14}\ \text{Bq.g}^{-1}$
Émission principale par désintégration (rendement d'émission)	β^- $E_{\text{max}} = 18,6\ \text{keV}$ (100%)
Énergie moyenne	β^- $E_{\text{moy}} = 5,7\ \text{keV}$
1 Unité Tritium	1 atome de $\text{T}/10^{18}$ atomes d'H soit $0,118\ \text{Bq HTO/L}$

2|2 | Le comportement physico-chimique du tritium

Les propriétés chimiques du tritium sont identiques à celles de l'hydrogène de masse 1 (^1H également appelé protium). Il peut exister sous plusieurs formes chimiques, notamment :

(1) **l'eau tritiée ou HTO**, légèrement plus lourde que l'eau légère H_2O , est la forme la plus abondante du tritium dans le milieu naturel et les espèces vivantes ;

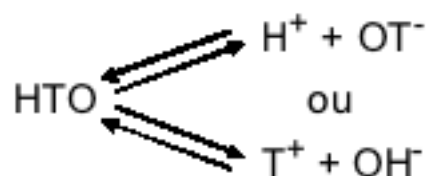
(2) **le tritium gazeux ou « hydrogène tritié » HT** : cette forme chimique, qui ne concerne qu'une fraction des rejets atmosphériques de tritium (cf. § 3), pourrait prendre de l'importance avec le développement

des recherches sur la production d'énergie par fusion nucléaire. Sous l'effet de processus d'oxydation, l'hydrogène tritié se transforme en eau tritiée et rejoint ainsi le cycle de l'eau ;

(3) **le tritium organiquement lié (TOL) ou OBT (Organically Bound Tritium)** : l'hydrogène étant un constituant majeur de la matière vivante (avec le carbone, l'oxygène et l'azote), le tritium peut devenir un constituant de molécules organiques à l'occasion de processus de biosynthèse (par exemple la photosynthèse) et de métabolisme, mais aussi d'échange avec le milieu ambiant.

2|2|1 | Le tritium dans le cycle de l'eau

La caractéristique fondamentale du tritium constituant une molécule d'eau (eau tritiée) est sa faculté d'échange rapide avec l'isotope 1 de l'atome d'hydrogène. En effet, les molécules d'eau ont une propriété de dissociation partielle (ou ionisation) en ions H^+ (hydraté avec une molécule d'eau pour devenir H_3O^+) et OH^- ; ainsi, dans le cas de l'eau tritiée, les équilibres suivants s'établissent :



L'état d'équilibre dépend des réactions acido-basiques avec les autres espèces chimiques en solution, déterminant le pH de l'eau, pouvant conduire l'élément hydrogène (H^+ ou T^+) ou l'ion hydroxyle (OH^- ou T^-) à se lier à des molécules basiques ou acides, dont certaines peuvent être des molécules organiques (cf. § 2.2.2).

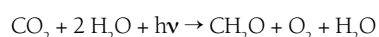
De la même façon, l'eau tritiée à l'état de vapeur a une capacité d'échange rapide avec l'eau légère (H_2O).

En raison de la différence de masse atomique entre le tritium (3) et le protium (1), on observe des phénomènes de ségrégation isotopique lors des changements de phase de l'eau (évaporation, condensation, solidification, fusion) qui entraînent un faible enrichissement en tritium par rapport à l'hydrogène stable dans la phase la plus condensée (eau liquide).

Au niveau du globe, ce sont essentiellement des processus physiques qui influencent la dynamique du tritium, en particulier en termes de temps de résidence dans les grands compartiments : stratosphère, atmosphère, biosphère, océans, eaux souterraines (IAEA, 2001). Au sein des écosystèmes, aux processus physico-chimiques viennent s'ajouter des mécanismes biologiques qui déterminent un comportement plus complexe du tritium, encore imparfaitement connu.

2|2|2 | Métabolisme du tritium chez les êtres vivants

La plupart des végétaux terrestres et aquatiques, dits autotrophes, ont la capacité de synthétiser des molécules organiques à partir de carbone, d'hydrogène et d'azote minéraux, grâce à la photosynthèse qui entraîne l'intégration d'hydrogène, donc de tritium, dans des glucides selon la réaction type suivante :



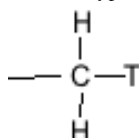
Le métabolisme du végétal entraîne la synthèse d'autres composants organiques (glucides, lipides, protéines, acides aminés...) qui peuvent à leur tour intégrer du tritium.

Pour l'ensemble des animaux, qui sont des organismes hétérotrophes, la biosynthèse des molécules organiques nécessaires à la constitution des cellules et des tissus ainsi qu'au métabolisme est réalisée à partir de molécules organiques venant de l'alimentation. Toutefois, dans le cas de l'élément hydrogène, donc en particulier du tritium, des échanges permanents ont lieu entre l'eau du milieu ambiant ou de l'eau cellulaire et des atomes d'hydrogène labiles des molécules organiques constituant la matière vivante.

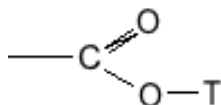
Ainsi, on considère depuis longtemps que le tritium peut se trouver sous deux formes dans les organismes vivants (e.g. IAEA, 1981 ; Murphy Jr, 1993 ; Belot *et al.*, 1996) :

- le tritium dit libre sous forme d'eau tritiée, HTO (en anglais TFWT, tissue free water tritium) qui est défini comme étant le tritium de la fraction extraite de l'échantillon par dessiccation (en général, lyophilisation) ;
- le tritium dit organiquement lié (TOL, ou organically bound tritium (OBT) ou tissue-bound-tritium (TBT)), constitué du tritium de la matière sèche et considéré comme lié ou intrinsèquement incorporé aux molécules organiques. Les différences de forces de liaison avec la matière organique conduisent à définir deux sous-fractions : le tritium organiquement lié échangeable avec l'eau cellulaire, l'eau ambiante ou la vapeur d'eau non tritiée ; le tritium organiquement lié non échangeable.

Le tritium organiquement lié non échangeable correspond à du tritium lié par une liaison covalente forte du type :



Le tritium lié échangeable correspond à du tritium associé à un acide organique du type :



Dans ce dernier cas, des phénomènes de dissociation ou de réactions acido-basiques favorisent l'échange du tritium avec la solution aqueuse ambiante, qu'elle soit intracellulaire, extracellulaire ou extérieure à l'organisme (vapeur d'eau pour les parties aériennes des organismes terrestres, eau liquide dans le sol ou dans les milieux aquatiques). Néanmoins, divers travaux dont ceux d'une équipe allemande (Baumgärtner and Kim, 2000 ; Baumgärtner *et al.*, 2001 ; Baumgärtner and Donhaerl, 2004) montrent qu'une part importante du tritium OBT non échangeable n'est pas nécessairement liée chimiquement à des atomes de carbone mais peut simplement se trouver fortement bloqué dans les « replis » des polymères de grande taille, comme l'ADN. De plus, l'hydrogène organique échangeable fait partie de différentes molécules qui ont des cinétiques d'échange variables avec l'hydrogène environnemental et qui sont donc susceptibles de réagir plus ou moins et plus ou moins vite, selon le protocole utilisé préalablement à la mesure (Pointurier *et al.*, 2004). Des recherches sont en cours depuis plusieurs années pour modéliser et quantifier la réactivité chimique de groupes fonctionnels aromatiques présents dans de nombreux composés par rapport à l'incorporation d'un atome de tritium contre un atome d'hydrogène (T-for-H exchange), en particulier à l'Université de Niigata au Japon (e.g., Imaizumi *et al.*, 1999) mais ces travaux restent encore au stade de recherche fondamentale.

Par ailleurs, il convient de souligner que l'appellation tritium organique non échangeable s'entend pour des échelles de temps limitées par la cinétique de renouvellement des constituants organiques des organismes, laquelle est inférieure à la durée de vie des organismes¹. En particulier, le catabolisme cellulaire (processus biologiques de destruction des molécules organiques) et la respiration conduisent à la production d'eau, le cas échéant tritiée, rejetée dans l'environnement. Ainsi, en toute rigueur,

le tritium, même incorporé dans les molécules organiques est donc toujours potentiellement échangeable. Ces processus d'échange à cinétique relativement lente peuvent encore être ralentis, voire bloqués après la mort des organismes, permettant une certaine rémanence du tritium dans des molécules organiques dans les sols ou dans les sédiments.

Les formes sous lesquelles se trouve le tritium dans la matière vivante, végétale et animale, font encore l'objet de recherches. Il est constaté que leurs définitions sont souvent associées aux protocoles permettant leur caractérisation et ne sont pas toujours le reflet exact de leur spéciation sensu stricto. Par exemple, la distinction entre *tritium organiquement lié échangeable* et tritium organiquement lié non échangeable est souvent faite en utilisant un protocole d'échange du tritium labile avec de l'eau liquide ou de la vapeur non tritiée : le tritium de l'eau récupérée après l'échange est alors considéré comme échangeable et le tritium restant dans le résidu est considéré comme non échangeable (Pointurier *et al.*, 2003 ; Pointurier *et al.*, 2004 ; Baglan *et al.*, 2005).

Selon les laboratoires ou les auteurs de publications, le « tritium OBT » peut signifier soit la totalité du tritium organiquement lié, soit uniquement sa fraction non échangeable, ce qui rend parfois difficile les comparaisons des résultats des différents auteurs. Les résultats expérimentaux ou de mesures in situ sont à examiner en fonction des protocoles de traitement des échantillons car il reste encore d'usage fréquent de considérer que le « tritium OBT » est celui de la matière sèche, donc le tritium organiquement lié total (souvent pour des raisons pratiques de moindre difficulté de mesure).

2|2|3| Notions de bioaccumulation, de bioamplification et de rémanence

L'étude du tritium dans l'environnement repose sur la quantification de la proportion d'atomes de tritium par rapport à l'ensemble des atomes d'hydrogène présents dans l'échantillon analysé, exprimée :

- soit en « unité tritium » (UT), représentant une proportion d'un atome de tritium pour 10¹⁸ atomes d'hydrogène, soit l'équivalent d'une activité volumique dans l'eau de 0,118 Bq/L ;
- soit en concentration volumique dans l'eau, représentant la proportion de molécules d'eau tritiée (HTO) parmi l'ensemble des molécules d'eau (H₂O).

Cette dernière grandeur est également utilisée pour le tritium organiquement lié, compte tenu des techniques analytiques mises en œuvre pour mesurer le tritium, conduisant à mettre l'hydrogène (donc le tritium) de l'échantillon sous forme aqueuse (cf. §4).

En pratique, il est possible de comparer les concentrations du tritium sous des formes moléculaires différentes (HTO vapeur, HTO liquide, OBT échangeable, OBT non échangeable) en les exprimant en termes d'activité de tritium par litre d'eau (Bq/L).

Compte tenu de la forte mobilité du tritium évoquée précédemment, que ce soit sous forme aqueuse ou dans les processus biologiques, on s'attend à observer une mise à l'équilibre rapide des concentrations de tritium dans différents compartiments en interface. En fait, comme on le verra dans les chapitres suivants, ce n'est pas toujours le cas. En l'occurrence, lorsque des concentrations de tritium plus élevées sont observées dans des organismes vivants par rapport à leur milieu ambiant, il convient d'évaluer la possibilité d'une bioaccumulation, voire d'une bioamplification.

D'une manière générale, la **bioaccumulation**, également appelée bioconcentration, désigne un phénomène d'accumulation progressive d'un contaminant ou d'une substance toxique dans un organisme, provenant de diverses sources, y compris l'atmosphère, l'eau et les aliments. La bioaccumulation définit ainsi la capacité de rétention par des matériaux vivants de composés divers qui s'accumulent jusqu'à une certaine quantité. En complément, la **bioamplification** désigne

¹ Par exemple, pour l'homme la durée de vie maximale de la plupart des cellules est de 15 ans environ (Spalding *et al.*, 2005).

l'augmentation cumulative, à mesure qu'on progresse dans la chaîne alimentaire (chaîne trophique), des concentrations d'une substance persistante.

Au sens strict du terme, la bioaccumulation résulte d'un phénomène d'accumulation progressive d'un contaminant ou d'une substance toxique dans un organisme, à partir de diverses sources, y compris l'atmosphère, l'eau et les aliments, jusqu'à l'obtention d'un état d'équilibre entre accumulation et élimination de la substance. Ainsi, en milieu aquatique, on parle de bioaccumulation lorsque, suite à une exposition durable à un contaminant à faible concentration dans l'eau, on observe une concentration plus importante dans l'organisme. Dans d'autres cas, lorsque la voie d'exposition est l'alimentation, il y a bioaccumulation lorsque la concentration du contaminant dans l'organisme exposé durablement est supérieure à celle mesurée dans son alimentation. Si le phénomène se reproduit à chaque étape d'une chaîne trophique, on parle alors de bioamplification telle que définie ci-dessus. A titre d'exemple, des phénomènes de bioaccumulation et de bioamplification peuvent être observés pour les PolyChloroBiphényle (PCB) dans l'eau, qui tendent à se fixer sur les graisses.

Il est habituel de décrire la bioaccumulation à l'aide d'un « facteur de bioaccumulation » (ou bioconcentration) défini par le rapport des concentrations du contaminant dans l'organisme vivant (ou un de ses organes ou tissus) et dans le milieu ambiant (l'eau, le plus souvent). Parfois, le facteur de bioconcentration est défini en considérant la concentration du contaminant dans les aliments consommés par l'organisme, plutôt que celle du milieu ambiant.

Il convient d'être prudent dans l'interprétation des facteurs de bioconcentration obtenus à partir de mesures ponctuelles dans l'environnement ; en effet, le constat de valeurs supérieures à 1 ne signifie pas systématiquement qu'il y a bioaccumulation :

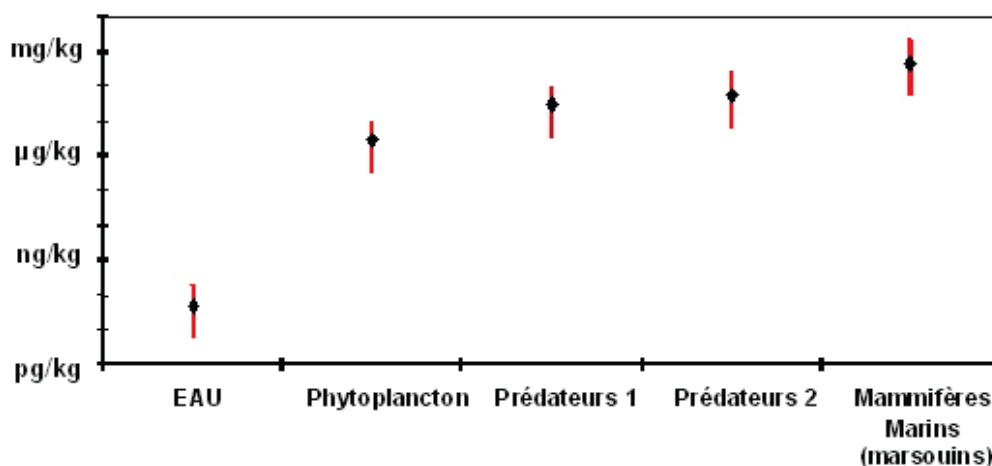
- si l'organisme vivant a été exposé dans son passé à des concentrations ambiantes plus importantes qu'actuellement, il peut exister une **rémanence** de cette contamination passée dans certains de ses tissus, induisant un déséquilibre apparent par rapport à la concentration actuelle du contaminant dans l'environnement, plus faible qu'autrefois. Ce phénomène se produit lorsqu'une substance se fixe dans l'organisme, à une concentration inférieure ou égale à celle de la source d'origine, et y reste plus ou moins durablement selon la vitesse d'élimination de la substance. La rémanence peut également être observée dans des milieux abiotiques (sols ou sédiments) lorsque des processus physico-chimiques conduisent à fixer durablement une substance dans le milieu (par exemple, le césium dans certains sols argileux) ;
- si l'organisme vivant est principalement exposé au contaminant via son alimentation et que celle-ci est exogène (venant d'une source extérieure au milieu de vie de l'organisme exposé), l'interprétation du facteur de concentration calculé à l'aide de la concentration du contaminant dans le milieu ambiant est biaisée ; il convient dans ce cas de calculer ce facteur à partir de la concentration mesurée dans les aliments avant de conclure sur une possible bioaccumulation.

A la lumière des cas étudiés plus loin pour le tritium, les réserves exprimées ci-dessus concernant l'interprétation des facteurs de bioconcentration ont toute leur importance.

Figure 2.1 – Illustration de la bioaccumulation et de la bioamplification des PCB dans des organismes marins (IFREMER – www.ifremer.fr).

La concentration dans le phytoplancton (premier maillon de la chaîne trophique) est nettement supérieure elle du milieu ambiant (eau) ;

la concentration continue de croître dans les maillons suivants, traduisant une bioamplification via l'alimentation.



3 | Origines naturelles et anthropiques du tritium

Les principales origines du tritium présent dans l'environnement sont : (1) la production naturelle principalement d'origine atmosphérique ; (2) la libération de tritium lors d'essais aériens anciens d'armes nucléaires ; (3) les rejets des installations du cycle du combustible nucléaire civiles et militaires en fonctionnement normal et lors des phases de démantèlement ; (4) les rejets liés à son utilisation dans l'industrie biomédicale, et plus généralement aux activités de recherches (molécules marquées) ; (5) l'utilisation ancienne du tritium dans l'horlogerie et la fabrication de peinture luminescente.

La quantité de tritium présente dans la biosphère a fortement augmenté lors des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère, entre 1945 et 1980. La décroissance radioactive a fait disparaître près de 90 % du tritium au cours de cette période. Aujourd'hui et pour les années à venir, les sources de tritium les plus importantes sont celles issues des rejets des installations du cycle du combustible nucléaire (réacteurs, traitement du combustible) et, dans le futur, celles des applications impliquant la fusion nucléaire.

3.1 | Production naturelle de tritium

Bien que sa période radioactive soit relativement courte, le tritium est présent à l'état naturel dans l'environnement. Il provient pour l'essentiel de l'action des rayonnements cosmiques sur l'azote, l'oxygène et l'argon de l'air. Environ 99 % du tritium ainsi produit se transforme en eau tritiée et s'intègre au cycle de l'eau (pluie, cours d'eau, océan, évaporation...). L'UNSCEAR (2000) a estimé que l'inventaire permanent du tritium naturel est d'environ $1,275 \cdot 10^{18}$ Bq (3,5 kg) à l'échelle planétaire, avec une production annuelle de l'ordre de $7,2 \cdot 10^{16}$ Bq (environ 200 g). La production tellurique, par réaction des neutrons issus de la fission spontanée de l'uranium, sur les traces de ^6Li présentes dans les roches, est difficile à estimer avec exactitude, mais il semble qu'elle soit très petite devant la production atmosphérique (Belot *et al.*, 1996).

² Estimation réalisée sur la base de la décroissance radioactive de 1963 à 2007 appliquée à la quantité initiale de 650 kg.

En 2008, le parc électronucléaire français a rejeté 1009,9 TBq de tritium (2,8 g) dans les rejets liquides et 24,2 TBq (0,06 g) dans les rejets gazeux (Tab. 3.2), soit 2,9 g au total.

Tableau 3.2 - Bilans annuels des rejets de tritium des centrales nucléaires (source EDF)

Type / année	Type de réacteur	2003	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets liquides (TBq/an/tranche)	900 MWe	10,2	10,2	10,6	11,2	10,5	10,8
	1300 MWe	24,1	25,5	25,9	29,1	27,3	26,8
	1450 MWe	13,1	20,1	17,6	25,8	18,6	26,8
Rejets liquides : Total Parc (TBq/an)		880,7	936,6	947,7	1038,4	979,6	1009,9
Rejets gazeux (TBq/an)	900 MWe	0,22	0,23	0,22	0,19	0,19	0,23
	1300 MWe	1,18	1,52	1,65	1,10	0,99	0,77
	1450 MWe	0,24	0,31	0,41	0,37	0,28	0,26
Rejets gazeux : Total Parc (TBq/an)		32,0	39,4	42,3	30,0	27,3	24,2

Les rejets dans les effluents liquides de tritium du réacteur EPR seront un peu plus élevés que ceux des tranches existantes (la production de ce radionucléide est proportionnelle à l'énergie produite) contrairement à ceux des autres radionucléides pour lesquels les activités rejetées devraient être inférieures du fait des recyclages et de la collecte améliorée des effluents liquides. Les rejets de tritium dans les effluents gazeux du réacteur EPR devraient être du même ordre de grandeur que pour les tranches en fonctionnement à Flamanville.

3|2|3| Usine de traitement de combustibles irradiés de La Hague (AREVA NC)

Origine. L'essentiel du tritium rejeté par l'usine de la Hague provient de la dissolution du combustible sous forme d'oxyde dans lequel du tritium est formé par fission. Les effluents liquides contiennent l'essentiel des rejets de tritium (plus de 99 %) de l'usine puisque les vapeurs sont lavées et se retrouvent donc sous forme d'eau tritiée HTO.

Activités rejetées. Pour les effluents liquides, les mesures d'activités de tritium sont réalisées dans chacune des cuves avant rejet. Pour les effluents gazeux, le tritium est prélevé par barboteur sur une chaîne d'échantillonnage implantée dans les cheminées des usines UP2-800 et UP3 ; le prélèvement s'effectue sur une semaine.

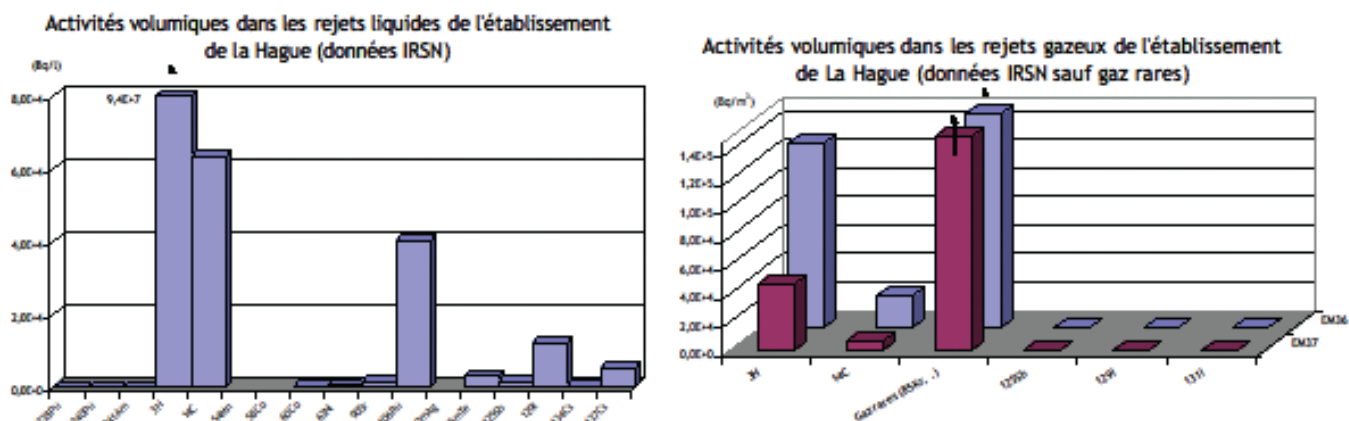
Chacune des activités volumiques de tritium mesurées usuellement sont présentées dans le tableau 3.3.

Tableau 3.3 - Activités volumiques du tritium usuellement mesurées dans les effluents de l'établissement AREVA de La Hague (source IRSN)

Effluents gazeux	40 000 à 100 000 Bq/m ³
Effluents liquides	100 000 000 Bq/L

Le tritium est le radionucléide prépondérant dans les rejets liquides et dans les rejets gazeux (hors gaz rares) (Fig. 3.2). Le tritium sous forme HTO ne peut pas être retenu par les procédés d'épuration des effluents industriels : en 2007, les activités de tritium rejetées dans les effluents des usines de La Hague sont mille fois plus élevées que celles de tous les autres radionucléides rejetés en mer.

Figure 3.2 - Spectres types des radionucléides présents dans les effluents liquides et dans les effluents gazeux des usines AREVA de La Hague (données IRSN)



La quantité de tritium rejetée étant globalement proportionnelle au tonnage de combustible traité, les activités rejetées sont relativement réparties sur l'ensemble de l'année (excepté pendant la période d'arrêt de juillet – août) (Tab. 3.4). Selon Belot *et al.* (1996), le taux de rejet des usines de traitement des combustibles irradiés dans les années 80-90 était en moyenne de 0,001 kg par GW et par an, principalement sous forme d'eau tritiée rejetée dans le milieu marin. Les rejets atmosphériques, principalement sous forme HT, ne représentent que quelques pourcents du rejet total. En 2008, les rejets des usines ont été de 22,8 g de tritium en milieu marin et de 0,13 g dans l'atmosphère.

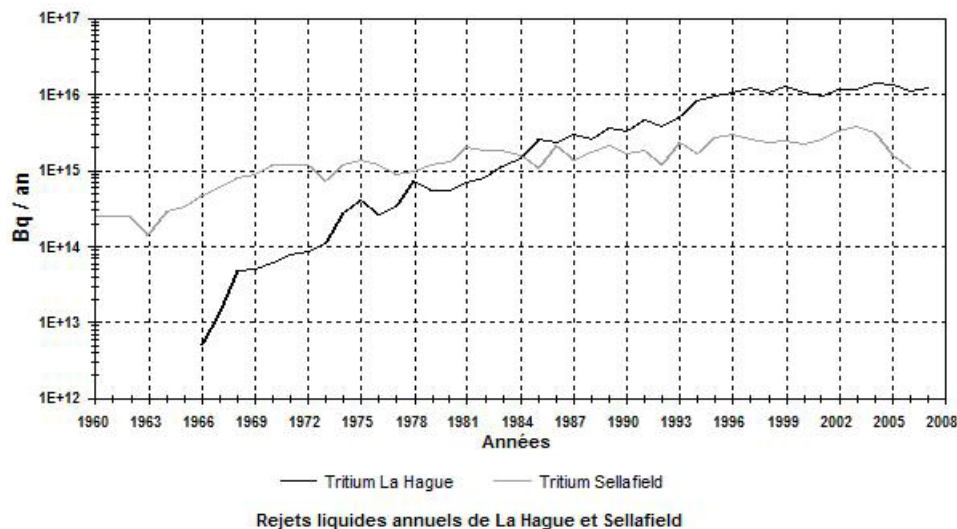
Tableau 3.4 - Bilans annuels des rejets de tritium de l'établissement de la Hague (source AREVA)

Type / année	2003	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets liquides (TBq/an)	11 900	13 900	13 500	11 100	12000	8190
Rejets gazeux (TBq/an)	67	71,3	72,1	67,8	63,6	46,4

Dans la Manche et la Mer du Nord, les rejets des usines de traitement des combustibles irradiés de Sellafield et de La Hague introduisent chaque année environ 10^{16} Bq de tritium (Fig. 3.3) ; les autres installations nucléaires ont une contribution dix à cent fois plus faible.

A la différence des autres radionucléides artificiels pour lesquels les activités rejetées ont fortement diminué depuis 20 ans, les rejets de tritium sont stables ou en augmentation, sensiblement proportionnellement aux quantités de combustibles traitées.

Figure 3.3 - Rejets de tritium dans la Manche et la Mer du Nord des usines de traitement de combustibles nucléaires de La Hague (France) et Sellafield (Grande-Bretagne).



Origine. Les activités du centre CEA/DAM de Valduc (Côte-d'Or), installation nucléaire de base classée secrète (INBS), concernent essentiellement la fabrication et le recyclage des composants des armes nucléaires de dissuasion françaises.

Deux activités contribuent principalement aux rejets de tritium :

- la fabrication de sous-ensembles nucléaires en tritium ainsi que les études et les développements associés ;
- le traitement des déchets tritiés issus des procédés de fabrication et l'entreposage des eaux tritiées de basse activité.

Dans cette installation, le tritium se trouve sous forme de composés divers, gazeux, liquides ou solides. Pendant les différentes opérations, il se produit des dégagements de tritium qui se retrouvent dans les systèmes de ventilation aboutissant aux 2 cheminées du bâtiment.

Ces bâtiments sont équipés de systèmes de piégeage du tritium gazeux par oxydation catalytique (le tritium gazeux devient de l'eau tritiée) et par passage sur tamis moléculaires.

Activités rejetées. L'activité de tritium rejeté est mesurée grâce à des barboteurs réfrigérés implantés dans 3 des 22 émissaires du site. Le tritium est rejeté principalement sous forme de vapeur d'eau (HTO), minoritairement sous forme de gaz (HT ou T₂). Les effluents tritiés gazeux représentent la grande majorité des rejets radioactifs de ce site (Fig. 3.4). Alors qu'elle dépassait 2000 TBq/an dans les années 1980, l'activité de tritium rejetée annuellement par ce centre est aujourd'hui de l'ordre de 300 TBq/an (Fig. 3.4 et Tab. 3.5).

Figure 3.4 - Évolution de l'activité du tritium dans les rejets d'effluents gazeux du centre CEA/DAM de Valduc et catégories de radionucléides présents (données CEA)

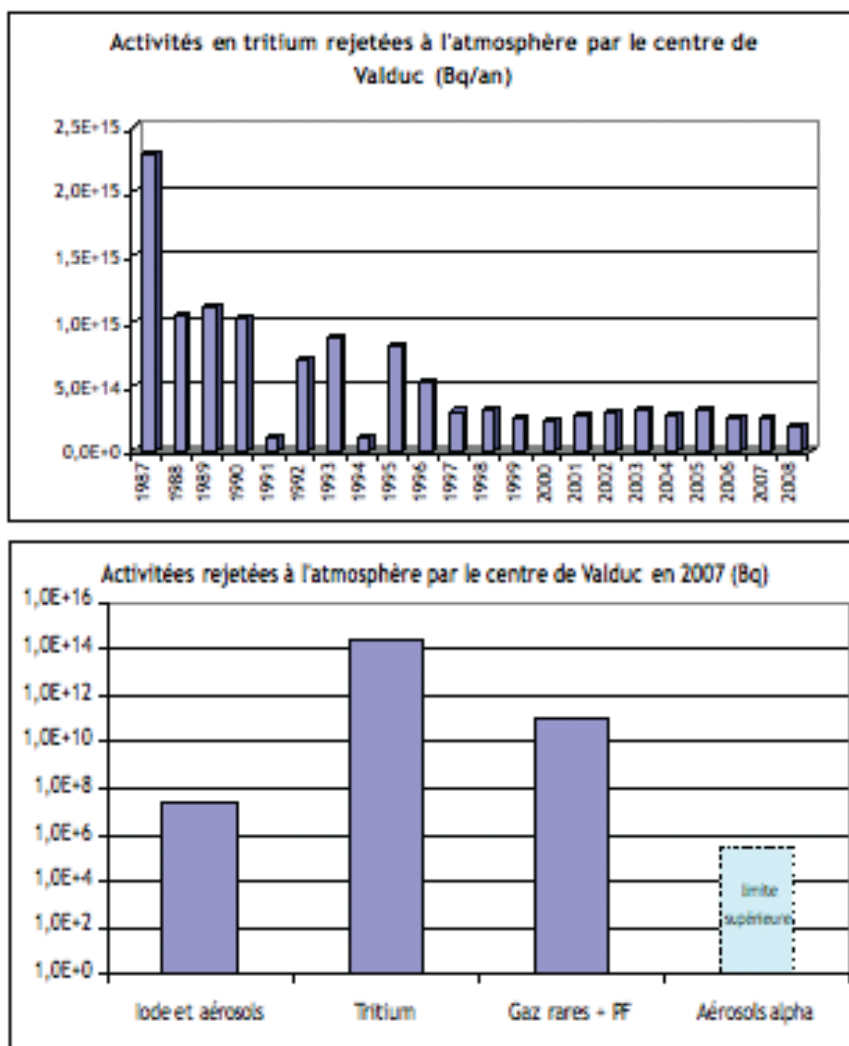


Tableau 3.5 - Bilans annuels des rejets de tritium
du site CEA/DAM de Valduc (source CEA)

Type / année	2003	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets gazeux (TBq/an)	327	277	332	260	251	185

3|2|5| Centre d'études de Bruyères-le-Châtel (CEA/DAM)

Origine. Le centre d'études de Bruyères-le-Châtel est en phase de dénucléarisation. Les effluents produits aujourd'hui correspondent à des activités d'assainissement et de démantèlement des installations. Les rejets radioactifs sont principalement du tritium rejeté dans l'atmosphère par les deux cheminées du centre.

Activités rejetées. Alors qu'elle était de l'ordre de 500 TBq/an, l'activité du tritium dans les rejets d'effluents gazeux représente aujourd'hui moins de 100 TBq /an. Dans les années à venir, ces rejets devraient encore diminuer fortement, voire disparaître (Tab. 3.6).

Tableau 3.6 - Bilans annuels des rejets de tritium
du site CEA/DAM de Bruyères-le-Châtel (source CEA)

Type / année	2003	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets gazeux (TBq/an)	100,7	99,4	95,2	73,5	95,2	52,0
Rejets liquides (GqB/an)	2,00	1,53	1,89	1,73	2,05	1,07

3|2|6| Centre de Marcoule (CEA - AREVA)

Origine. Les activités civiles du centre de Marcoule sont réalisées dans des installations dédiées essentiellement à des études sur la transmutation (PHENIX) et sur la radiochimie de l'aval du cycle du combustible (laboratoire Atalante). Sur ce site sont présents également l'usine MELOX de fabrication de combustible nucléaire MOX et le centre de traitement et de conditionnement des déchets radioactifs CENTRACO. Le site abrite également des installations dédiées à des usages de défense (INBS) qui sont à l'origine des principaux rejets de tritium du centre : les deux réacteurs Célestin I et II et l'atelier tritium (ATM) qui assurent la production de tritium pour le CEA/DAM. L'ensemble des effluents radioactifs du site transite par la STEL (Station de Traitement des Effluents Liquides) de l'INBS.

Activités rejetées. Le tritium est le radionucléide majoritaire à la fois dans les effluents liquides et dans les effluents gazeux du site (Fig. 3.5 et Tab. 3.7).

Figure 3.5 - Spectre type des radionucléides présents dans les effluents liquides
de l'établissement de Marcoule (données IRSN)

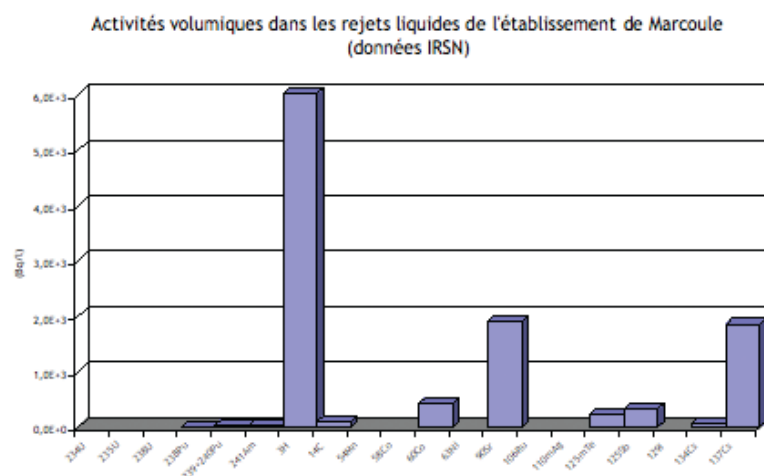


Tableau 3.7 - Bilans annuels des rejets de tritium du site CEA de Marcoule (rapport CEA/Marcoule, 2008)

Type / année	2003	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets gazeux (TBq/an)	320	390	290	270	370	270
Rejets liquides (GqB/an)	24,1	25	15,9	17	18,5	23,0

3|2|7| Centre d'études de Saclay (CEA)

Origine et activités rejetées (Tab. 3.8). Le centre d'études de Saclay abrite une centaine d'installations dédiées à la recherche et à l'enseignement. Neuf d'entre elles sont des INB, 53 sont des ICPE. Les rejets gazeux tritiés (16 TBq en 2008 soit 0,04 g en 2008) sont essentiellement imputables à un laboratoire de marquage de molécules organiques (ICPE). Le tritium présent dans les rejets liquides du centre est attribué au même laboratoire ainsi qu'à l'exploitation du réacteur ORPHEE (INB 101), dédié à la production de faisceaux de neutrons pour la recherche sur la matière condensée.

Tableau 3.8 - Bilans annuels des rejets en tritium du site CEA de Saclay (rapport CEA/Saclay, 2008)

Type / année	2003	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets gazeux (TBq/an)	25	36	19	22	20,1	16,0
Rejets liquides (GqB/an)	53	41	33	48	43	30

3|2|8| Centre d'études de Cadarache (CEA)

Origine et activités rejetées. Parmi les 50 installations du centre d'études de Cadarache, 19 sont des INB, 30 sont des ICPE et la dernière est une INBS. Les rejets tritiés dans l'atmosphère sont principalement dus au réacteur CABRI (INB 24), à la station de traitement des effluents et déchets (INB37) et à l'installation LECA-STAR (INB 55). Les activités de tritium rejetées par ce centre, dans les effluents gazeux ou les effluents liquides, sont faibles comparées à celles rejetées par les installations nucléaires précitées (Tab. 3.9).

Tableau 3.9 - Bilans annuels des rejets de tritium du site CEA de Cadarache (rapport CEA/Cadarache, 2008)

Type / année	2004	2005	2006	2007	2008
Rejets gazeux (TBq/an)	134	57	26,6	26,6	13,1
Rejets liquides (GqB/an)	36,3	41,5	36,7	53,4	24,2

3|2|9| Projet ITER

L'installation ITER, dont la construction à côté du site de Cadarache a débuté en 2009, mettra en œuvre de grandes quantités de tritium, constituant élémentaire de la réaction de fusion. En phase d'exploitation (les premières expérimentations sont prévues en 2018-2020), les rejets gazeux de l'installation ITER seront filtrés et détrités avant d'atteindre l'atmosphère. Les activités de tritium dans les rejets annuels gazeux sont estimées à environ 90 TBq (0,5 g). L'activité rejetée annuellement dans les effluents liquides, dont le traitement sera mutualisé avec ceux du centre de Cadarache, sera de l'ordre de quelques TBq (quelques mg).

Origine et activités rejetées. Le réacteur à haut flux (RHF) de l'ILL (INB 67) met en œuvre des flux de neutrons pour la recherche (neutronographie et structure de la matière). Il fonctionne par cycles de 56 jours. Les rejets principaux liés à l'exploitation de ce réacteur sont des effluents gazeux tritiés. Depuis une dizaine d'années, les activités de tritium dans les rejets gazeux sont comprises entre 5 et 30 TBq/an (Tab. 3.10).

Tableau 3.10 - Bilans annuels des rejets de tritium du réacteur de l'ILL à Grenoble (rapport ILL, 2008)

Type / année	2006	2007	2008
Rejets gazeux (TBq/an)	26,6	26,6	13,1
Rejets liquides (GqB/an)	36,7	53,4	24,2

3|2|11| Déchets nucléaires immergés en mer

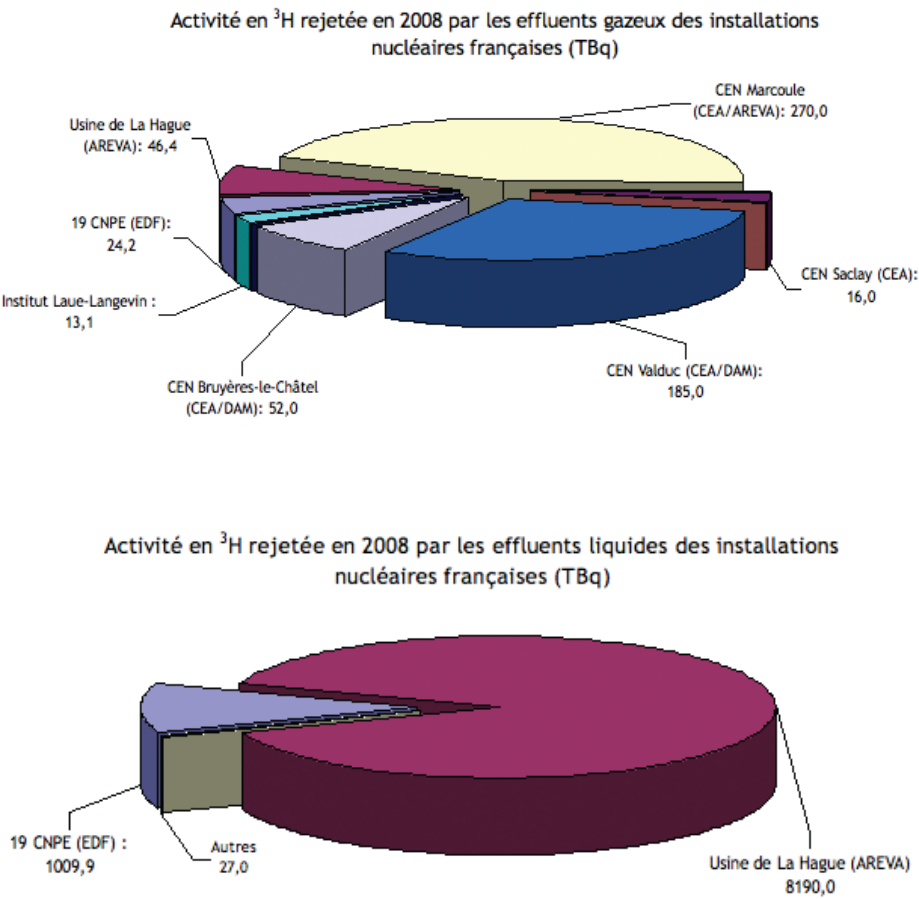
Du tritium est présent dans les déchets nucléaires immergés en mer de 1949 à 1982, principalement dans l'Atlantique du nord-est. L'inventaire est de l'ordre de 4.10^{16} Bq de tritium (environ 112 g).

3|3| Synthèse

Hors gaz rares, le tritium est aujourd'hui, avec le carbone 14, l'un des deux principaux radionucléides rejetés par les installations nucléaires françaises en fonctionnement normal, que ce soit dans les rejets gazeux ou dans les rejets liquides. Les rejets liquides actuels contiennent globalement plus de 90 % des rejets totaux de tritium. Ils sont essentiellement dus aux installations du cycle du combustible nucléaire (CNPE et traitement des combustibles irradiés) alors que les rejets gazeux sont principalement dus aux activités liées à des applications militaires (Fig. 3.6). Contrairement aux autres radionucléides produits par ces installations, pour lesquels les activités rejetées ont diminué d'un facteur 100 ou plus durant les 20 dernières années, les activités de tritium rejetées restent globalement constantes ; elles augmenteront même dans les années à venir, avec le passage à de nouveaux modes de gestion du combustible dans les CNPE puis avec le développement du projet ITER.

En 2008, le fonctionnement des installations nucléaires, en France métropolitaine, a conduit au rejet dans l'atmosphère d'une masse totale de 1,7 g de tritium dans les effluents gazeux et d'une masse totale de 25,7 g dans les effluents liquides. Ces valeurs sont à comparer avec l'inventaire mondial de tritium ayant pour origine les anciens essais militaires aériens, estimé en 2007 à 35 kg présents essentiellement dans les océans. Les 3,5 kg de tritium d'origine naturelle présents dans la biosphère correspondent à une production de 201 g par an.

Figure 3.6. - Bilans 2008 des activités de tritium rejetées par les principales installations nucléaires françaises



Les différentes méthodes de mesure du tritium et les limites de détection (LD) généralement associées sont répertoriées sur la figure 4.1. A l'exception de la mesure par l'hélium-3, toutes les techniques passent par une étape où le tritium se trouve dans une molécule d'eau (HTO, eau tritiée), soit parce qu'il s'agit de l'état initial du tritium de l'échantillon (tritium libre), soit parce que ce dernier se retrouve dans l'eau synthétisée par une combustion de l'échantillon (tritium organiquement lié). Une unité historique existe dans le domaine de la métrologie du tritium : l'Unité de Tritium (UT), correspondant à une concentration de un atome de tritium pour 10^{18} atomes d'hydrogène, est généralement utilisée dans les domaines de l'hydrogéologie ou de l'océanographie. La relation entre 1 UT et le Bq est : $1 \text{ UT} = 0,118 \text{ Bq.L}^{-1}$ d'eau ou encore $1 \text{ Bq.L}^{-1} = 8,47 \text{ UT}$.

4.1 | Échantillonnage et préparation des échantillons en vue de la mesure du tritium

En vue de la mesure du tritium, un soin particulier doit être apporté au conditionnement du prélèvement afin de prévenir la mise à l'équilibre du tritium avec le milieu ambiant entre la collecte et la mesure (Belot *et al.*, 1996).

Dans l'air, la vapeur d'eau tritiée peut être prélevée par aspiration à travers un volume connu d'eau à faible teneur en tritium, ou à travers des colonnes de desséchant solide, tel que le silicagel par exemple. L'air passe à travers le collecteur à un débit constant connu pendant une période de temps déterminée, de sorte que l'on peut déterminer le volume total d'air échantillonné. La quantité totale d'eau tritiée récupérée dans le collecteur est divisée par le volume total de l'air échantillonné pour déterminer la concentration du tritium dans l'air, sous forme d'eau tritiée. Les autres composés tritiés habituellement présents dans l'air, hydrogène et méthane tritiés, ne sont pas collectés par les absorbants mentionnés ci-dessus. Pour prélever le tritium qu'ils contiennent, il faut préalablement les oxyder en eau tritiée en présence d'un catalyseur.

Une autre méthode a été mise au point et brevetée récemment par l'IRSN (système PREVAIR). Elle consiste à condenser la vapeur d'eau atmosphérique sur un échangeur froid ; cette technique permet de collecter en quelques minutes de la vapeur d'eau en quantité mesurable. La mesure du tritium est faite directement sur l'eau de condensation, sans dilution par l'eau du collecteur.

Dans les eaux continentales et marines, les échantillons sont collectés le plus souvent de manière manuelle, dans des récipients parfaitement étanches, si possible en verre. Lorsque l'on veut déterminer le tritium présent dans les précipitations atmosphériques, il est important de les isoler de la vapeur d'eau ambiante en ajoutant un peu d'huile minérale ou d'octane par exemple dans les collecteurs de précipitation. L'huile qui surage à la surface de l'échantillon limite les échanges entre l'échantillon d'eau de pluie et l'atmosphère. Si l'on ne prend pas cette précaution, la mesure du tritium dans l'eau de pluie est grandement faussée.

Dans les sols meubles tels que les sols cultivés, des carottes de sol peuvent être prélevées en enfonçant des tubes en acier qui sont ensuite fermés aux deux extrémités par des bouchons filetés à joint étanche et conservés au congélateur avant analyse.

Pour les végétaux, lorsque cela est possible, l'échantillon est introduit directement dans le récipient où il est ultérieurement traité. Si un stockage intermédiaire s'impose, il est recommandé de congeler l'échantillon dans un conteneur étanche pour éviter toute décomposition et toute contamination croisée par de l'air.

La figure 4.2 résume les différentes étapes nécessaires à la préparation des échantillons solides (sols, sédiments, végétaux, animaux) pour la mesure du tritium.

Figure 4.1 - Différentes méthodes d'analyse du tritium et limites de détection associées (SL : scintillation liquide ; LD : limite de détection)

Tritium lié à la matière organique

Tritium libre

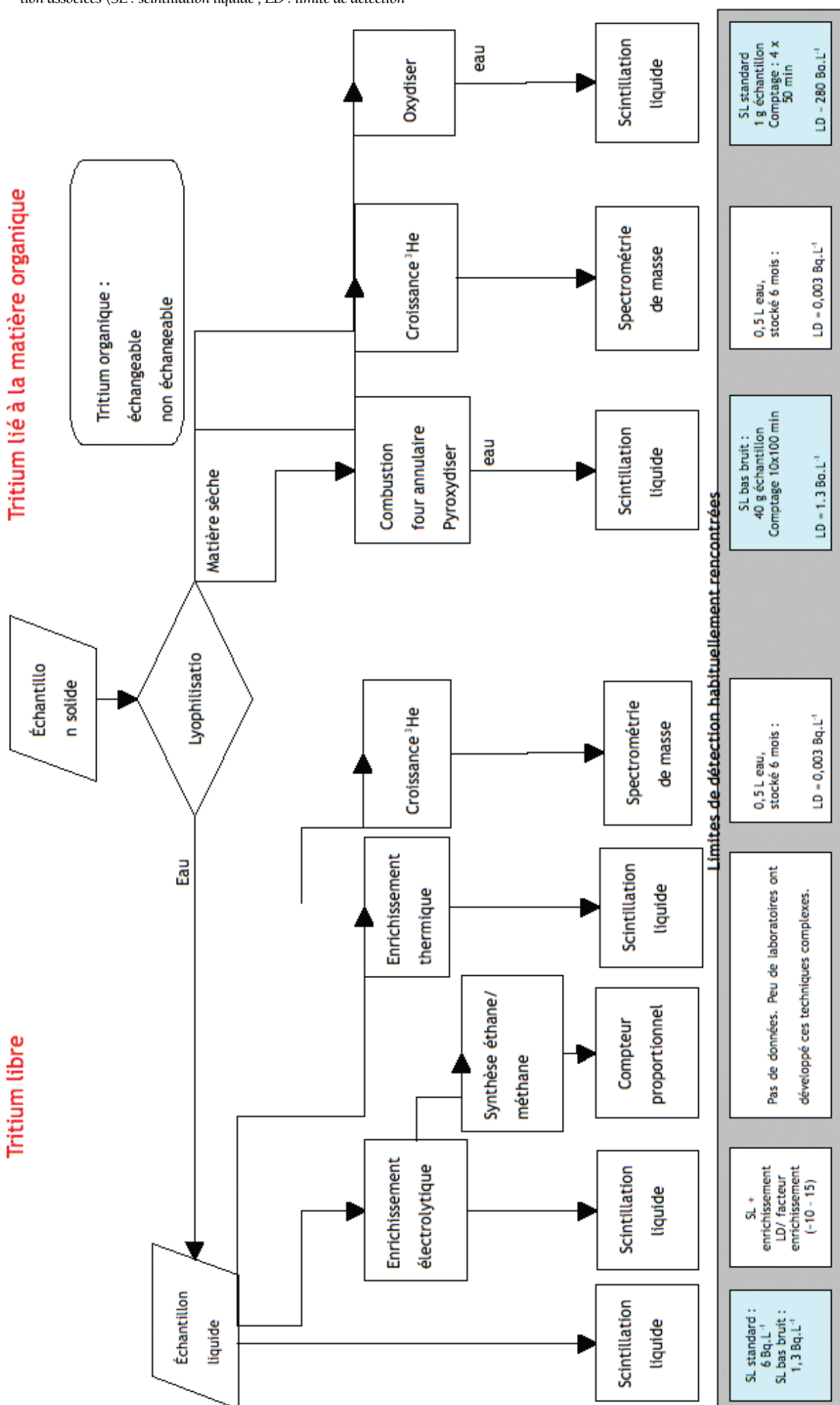
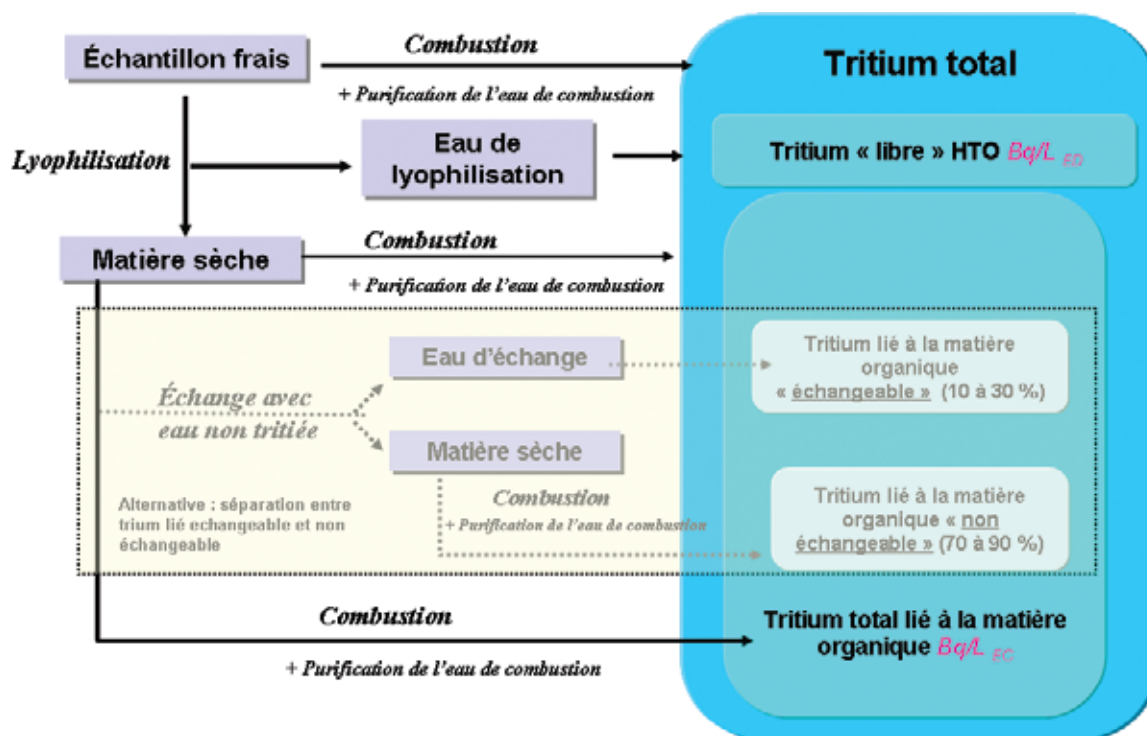


Figure 4.2 – Exemple d'étapes préalables à la préparation des échantillons solides (hors eau, air) pour la mesure du tritium (ED : Eau de Distillation ; EC : Eau de combustion). En gris figure une variante qui consiste à séparer, dans la fraction sèche, le tritium organique échangeable du tritium organique « non échangeable ».



4|2| Métrologie du tritium libre

Pour les échantillons solides, une lyophilisation permet de sécher l'échantillon et de récupérer l'eau tritiée (HTO) qu'il contient.

4|2|1| Scintillation liquide

Le principe de la mesure par scintillation liquide (SL) est de mettre en contact le tritium avec un liquide scintillant. Chaque particule β^- émise lors de la décroissance du tritium excite les molécules scintillantes qui, en se désexcitant, émettent de la lumière. Ce transfert d'énergie peut être gêné par les impuretés présentes dans l'eau (« quenching ») ; c'est pourquoi des étapes de purification de l'échantillon au travers de distillations sont nécessaires avant la mise en contact de l'eau de constitution et du liquide scintillant. Les flashes lumineux émis par les molécules scintillantes sont observés par des photomultiplicateurs. L'intensité des flashes donne une indication sur l'énergie de la particule β^- incidente. La fréquence des flashes donne une indication sur l'activité de l'échantillon. Certains compteurs à scintillation liquide permettent d'atteindre des limites de détection plus basses, du fait de bruits de fond inférieurs : ils sont appelés SL bas bruit de fond (Fig. 4.1).

4|2|2| Comptage proportionnel

Une alternative à la scintillation liquide est le comptage proportionnel. Le tritium et l'hydrogène sont convertis en gaz pour être mélangé intimement. Cette technique est présentée de manière informative, peu de laboratoires l'utilisant. Le gaz hydrogène (H_2 ou HT) est obtenu à partir de l'eau par la réaction :

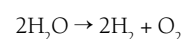


Avant injection dans le compteur proportionnel, le gaz hydrogène peut ensuite être soit mélangé directement à de l'argon, soit transformé en éthane ou propane, selon les réactions suivantes :

4|2|3| Méthodes d'enrichissement en tritium

Il existe deux méthodes pour l'enrichissement artificiel du tritium dans l'eau : l'enrichissement électrolytique et l'enrichissement thermique.

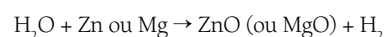
Enrichissement électrolytique. Cette méthode est relativement simple et nécessite peu de manipulation ou de surveillance si ce n'est les précautions contre l'accumulation d'hydrogène et les risques d'explosion associés. La conductivité de l'eau est augmentée par l'ajout de Na_2O ou de NaOH , l'eau est ensuite décomposée par le passage d'un courant électrique :



Le fractionnement isotopique de l'hydrogène est élevé, 90 % du tritium de l'échantillon restant dans l'eau. Ainsi, si le volume d'eau diminue d'un facteur 10, l'enrichissement est environ d'un facteur 9. A la fin de l'électrolyse, l'échantillon est distillé à nouveau pour supprimer l'électrolyte avant la mesure de la radioactivité. Si la quantité d'eau est suffisante, il est possible de répéter l'enrichissement une deuxième fois, l'enrichissement est alors de 9×9 mais le nombre d'échantillons traités simultanément est divisé par 10.

Cette méthode performante est plus difficilement applicable au tritium organiquement lié car, pour enrichir, il faut disposer d'eau en excès. Pour augmenter la quantité d'eau récupérée, il faudrait multiplier les combustions pour un même échantillon. Étant donné la complexité des combustions, cette solution semble peu envisageable.

Enrichissement thermique. Lorsqu'un mélange de gaz est mis en présence d'une paroi froide ou chaude, le composant de masse élevé tend à se concentrer sur la zone froide et le composant léger sur la zone chaude. L'eau est réduite en hydrogène gazeux :



Le gaz hydrogène (H_2) est ensuite injecté dans une enceinte permettant cette séparation. Cette méthode est relativement complexe ; peu de laboratoires peuvent l'appliquer.

4|3| Métrologie du tritium lié à la matière organique

Comme expliqué plus haut, le tritium lié à la matière organique l'est sous deux formes :

- le tritium non échangeable, dont les atomes sont fortement liés à la matière organique (liaisons H-C) et restent dans celle-ci tant qu'elle n'est pas dégradée (cf. §2.2.2) ;
- le tritium échangeable, dont les atomes, peu liés à la matière organique (liaisons H-N, H-S et O-H), peuvent s'échanger avec l'hydrogène de l'eau interstitielle. Des essais sont effectués au sein du GT31 (sous-groupe tritium) de la CETAMA pour extraire cette forme du tritium lié en mettant l'échantillon en contact avec de l'eau non-tritiée (type eau des Abatilles). Ces essais sont encore peu concluants, car peu répétables.

Actuellement, la mesure du tritium lié à la matière organique est faite sur la somme des deux composantes « tritium échangeable » et « tritium non échangeable ».

4|3|1| Combustion dans un four tubulaire (PYROXYDISER)

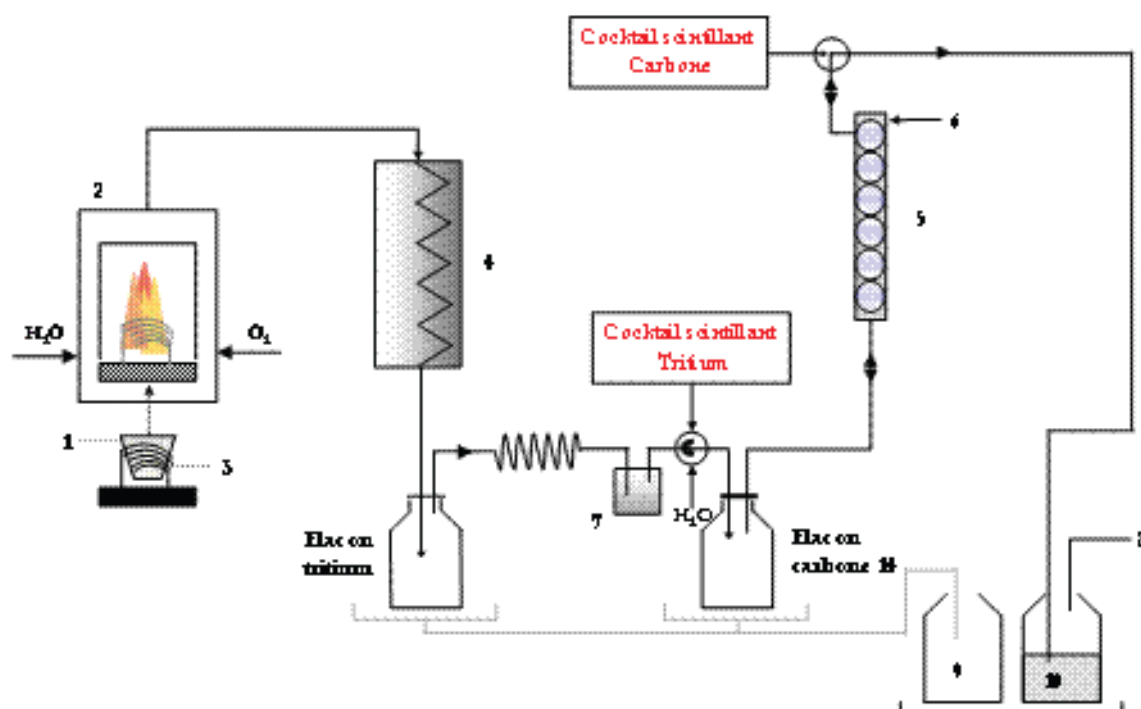
La combustion de l'échantillon lyophilisé permet l'extraction du tritium lié à la matière organique (échangeable et non échangeable) par oxydation catalytique des gaz de combustion. La combustion se déroule en deux étapes : une première phase de pyrolyse sous argon et une deuxième phase d'oxydation sous oxygène. L'eau produite est piégée à froid, puis distillée pour limiter le « quenching » en scintillation liquide. L'activité du tritium est déterminée en Bq.L^{-1} d'eau de combustion recueillie. Une mesure du pourcentage d'hydrogène dans l'échantillon sec permet de remonter à l'activité par kg de matière sèche. La quantité d'échantillon sec traitée est de l'ordre de 15 à 40 g suivant sa nature, pour récupérer au moins 10 g d'eau. Dans ces conditions, pour un temps de comptage de 1000 min sur un scintillateur liquide bas bruit de fond, la limite de détection atteinte est de $1,3 \text{ Bq.L}^{-1}$ dans l'eau. Le dispositif est présenté sur la figure 4.3.

Figure 4.3 - Dispositif de mesure du tritium organiquement lié par combustion dans un four tubulaire (Pyroxydiser).



La figure 4.4 présente le principe de fonctionnement de l'Oxydiser. Le principe est le même que celui du Pyroxydiser : combustion et récupération de l'eau de combustion. La différence provient de la quantité d'échantillon analysée : un gramme dans le cas de l'Oxydiser, contre plusieurs dizaines de grammes dans le cas du Pyroxydiser. La limite de détection du tritium est de 280 Bq.L^{-1} (1 g d'échantillon, comptage de 4x50 min sur un compteur à scintillation liquide standard).

Figure 4.4 - Oxydiser et Schéma de principe de la mesure du tritium organiquement lié par Oxydiser.



- 1 : cône porte échantillon
- 2 : chambre de combustion
- 3 : résistance chauffante
- 4 : condenseur refroidi à l'air
- 5 : colonne d'absorption de CO_2
- 6 : liquide absorbant de CO_2 (carbosorb)
- 7 : filtre
- 8 : évent
- 9 : déchets liquides
- 10 : déchets gazeux

4|3|3| Mesure par l'hélium-3

Le principe de cette technique consiste à mesurer la teneur en hélium-3, descendant stable du tritium. L'échantillon est dégazé sous vide puis stocké en ampoule scellée sous atmosphère inerte pour permettre la formation d'hélium-3, pendant une durée dépendant de la limite de détection à atteindre. Après un nouveau dégazage, l'hélium-3 est collecté et la teneur de ce gaz rare est ensuite déterminée par spectrométrie de masse (Fig.4.5). La quantité d'hélium-3 produite pendant cette période de stockage (t) est déterminée par l'équation :

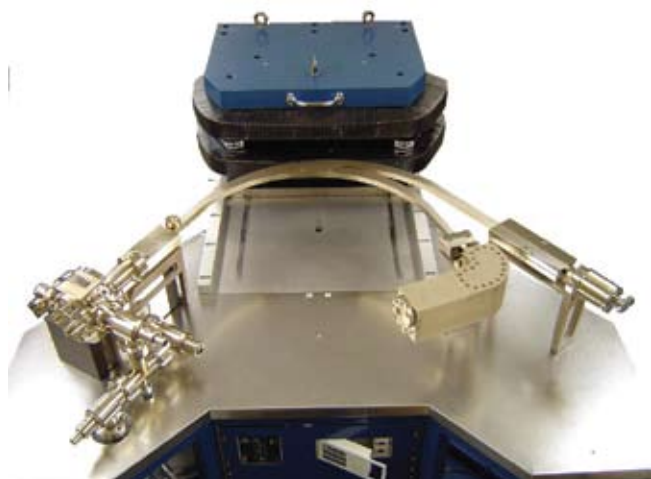
$${}^3\text{He}_t = {}^3\text{H}_0 - {}^3\text{H}_t = {}^3\text{H}_0(1 - e^{-\lambda t})$$

La concentration initiale en tritium (${}^3\text{H}_0$) de l'échantillon est donc donnée par la formule :

$${}^3\text{H}_0 = {}^3\text{He}_t / (1 - e^{-\lambda t})$$

Les limites de détection associées à cette technique sont bien plus basses que celles des autres techniques de mesure du tritium. Par exemple, la décroissance du tritium pendant 6 mois dans un échantillon de 0,5 L d'eau permet de mesurer le tritium avec une limite de détection de 0,003 Bq/L. Il est à noter qu'en raison du délai d'obtention des résultats, cette technique n'est pas appropriée pour une surveillance de routine du tritium dans l'environnement et son usage doit plutôt être recommandé pour des études radioécologiques ou des recherches expérimentales.

Figure 4.5 - Spectromètre de masse pour mesure des isotopes de l'hélium



4|4| Synthèse

La technique de mesure du tritium dans l'eau la plus couramment utilisée est la technique par scintillation liquide qui présente l'avantage d'être simple et rapide à mettre en œuvre. La limite de détection est de l'ordre de 6 Bq/L pour les mesures faites avec un liquide scintillant standard et peut être divisée par un facteur 5 pour les mesures faites avec un liquide scintillant « bas bruit de fond ». Cette technique est adaptée pour effectuer des mesures de routine dans le cadre du contrôle réglementaire des niveaux de tritium dans l'environnement à proximité des installations nucléaires ; l'objectif étant de détecter une élévation anormale de l'activité du tritium dans l'environnement.

Il existe d'autres techniques qui permettent d'atteindre des limites de détection beaucoup plus basse ; la technique de mesure de l'hélium-3 (${}^3\text{He}$) par spectrométrie de masse permet en particulier d'atteindre une limite de détection de l'ordre de 0,003 Bq/L. Du fait de son coût et du délai important de mise en œuvre, cette technique doit être réservée aux études radioécologiques qui s'intéressent au devenir et au comportement du tritium dans les différentes composantes physiques et biologiques de l'environnement.

5| Concentrations de tritium observées dans les différents compartiments de l'environnement

5|1| Le tritium dans les compartiments des milieux terrestre et aquatique continental

5|1|1| Sources des données disponibles

L'IRSN dispose de nombreux résultats d'analyses du tritium dans des échantillons terrestres et aquatiques prélevés dans le cadre des études radioécologiques réalisées sur le territoire métropolitain français, autour des diverses installations nucléaires (centrales en fonctionnement ou en démantèlement, centres de traitement des combustibles irradiés, centres de stockage...), dans des zones naturelles impactées par les activités nucléaires ou hors de toute influence industrielle afin de déterminer les bruits de fond pour les différents radionucléides régulièrement étudiés.

Les mesures réalisées par l'IRSN dans les milieux terrestre et aquatique continental portent notamment sur des bioindicateurs (végétaux spontanés) et sur des produits de consommation. En choisissant des espèces communes ou similaires sur l'ensemble du territoire, on peut comparer les résultats obtenus dans des zones géographiques éloignées. Le choix des bioindicateurs permet également de pointer soit des variations rapides des conditions du milieu, soit au contraire des pollutions plus diffuses ou chroniques : par exemple, en milieu aquatique, on pourra prélever des plantes aquatiques annuelles (phanérogames) qui réagissent rapidement à une pollution externe ou s'attacher aux prélèvements de mousses aquatiques (bryophytes) qui, du fait d'une croissance plus lente et pluriannuelle, permettent d'observer l'intégration de radionucléides sur une période plus longue.

A ce jour, l'IRSN dispose de résultats de mesures de tritium libre dans 1116 échantillons prélevés en milieu terrestre et 736 échantillons prélevés en milieu aquatique (cours d'eau pour l'essentiel), et du tritium organiquement lié dans 864 et 778 échantillons prélevés dans les milieux terrestre et aquatique respectivement.

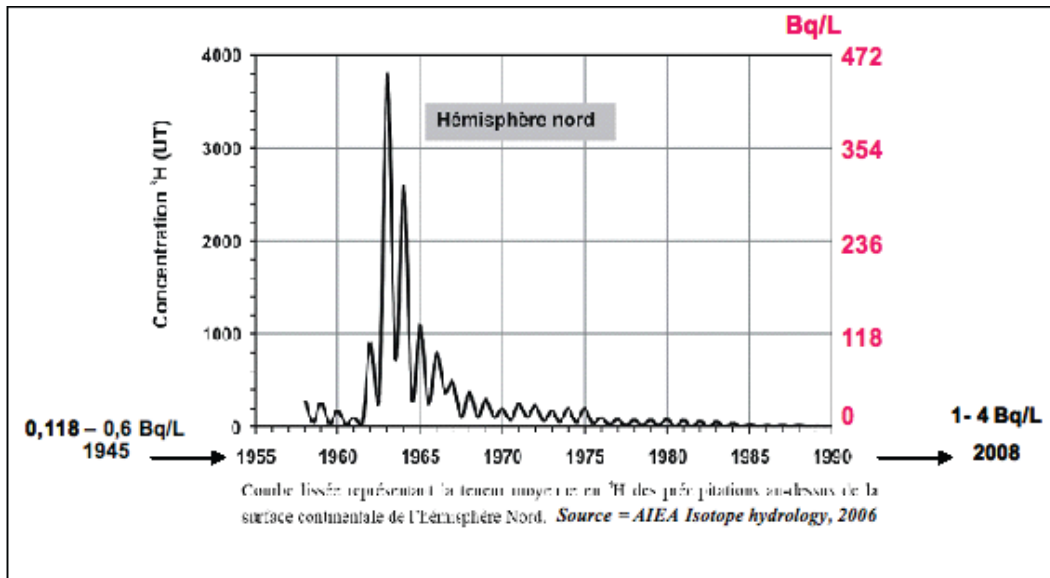
Pour les matrices similaires à celles analysées par l'IRSN, quelques éléments de comparaison avec les données publiées dans la littérature scientifique sont également fournis. Ces données sont à la fois nombreuses et disparates du fait d'une part des objectifs des différentes études correspondantes, d'autre part de la variabilité spatiale des données acquises, parfois même des méthodes de prélèvement, voire des techniques analytiques.

Une analyse détaillée de l'ensemble de ces données figure dans un rapport de l'IRSN (Antonelli, 2008). Seule une synthèse est rapportée ci-après.

5|1|2| Niveaux actuels et évolutions de la concentration du tritium dans les eaux de pluie et dans l'air

L'AIEA (2006) a publié un document présentant l'évolution temporelle de l'activité du tritium dans les précipitations au dessus de la surface continentale dans l'hémisphère nord (Fig. 5.1). L'influence des apports liés aux essais nucléaires aériens y est nettement visible, avec une augmentation des concentrations de tritium allant jusqu'à trois ordres de grandeur entre le début et la fin des années soixante. En 2008, les activités mesurées varient entre 1 et 4 Bq/L d'eau de pluie. L'activité volumique du tritium dans l'air peut être déduite de l'activité volumique de tritium dans l'eau de pluie en considérant que l'activité du tritium dans l'eau de pluie est en équilibre avec celle du tritium dans la vapeur d'eau dans l'air ambiant. Ainsi, à une activité de 1 Bq/L d'eau de pluie correspond une activité volumique de l'air de l'ordre de 0,01 Bq/m³ d'air (Renaud et Gurriaran, 2009).

Figure 5.1 - Évolution de la teneur en tritium dans l'eau de pluie de 1958 à 1990 exprimée en Unité Tritiée (UT) et en Bq/L. Les gammes d'activités correspondant d'une part au bruit de fond naturel cosmogénique antérieur aux essais nucléaires, d'autre part au niveau actuel, ont été ajoutées à la courbe de l'AIEA.



Aujourd'hui, en France, les installations de Valduc, Marcoule et La Hague entraînent, à leurs alentours, des concentrations très significatives de tritium dans l'air (et donc dans leur environnement). En revanche, un tel marquage de l'air par le tritium n'est pas clairement visible autour des centrales.

5.1.3 Tritium libre et organiquement lié dans les autres compartiments des écosystèmes continentaux

5.1.3.1 Activités mesurées

Gammes d'activités de tritium par types de matrices. Le tableau 5.1 et la figure 5.2 présentent une synthèse des gammes d'activités de tritium libre (HTO) et de tritium organiquement lié (OBT) mesurées sur le territoire métropolitain dans les différents compartiments des écosystèmes terrestres et d'eau douce. Cette synthèse a été établie à partir des données de l'IRSN. La diversité des prélèvements et de leurs localisations et l'étendue des dates de mesure (20 dernières années) rendent difficile la lecture des données dans leur ensemble. Ces activités ne reflètent sans doute qu'une partie de la réalité compte tenu des lacunes d'observation pour certaines matrices pour lesquelles seules des chroniques courtes sont disponibles, ou de l'absence de points de prélèvement pour certaines matrices et certaines périodes dans les zones « non influencées » par des rejets radioactifs. Par ailleurs, il n'est pas aisé d'identifier les résultats de mesure de radionucléides sous ou hors influence des rejets.

En milieu terrestre, la rose des vents de chacun des sites permet de situer les points de prélèvement sous ou hors influence vraisemblable des rejets atmosphériques. Cependant, ceci n'exclut pas que des orientations de vents moins fréquentes ou un temps de pluie aient pu entraîner un faible marquage par le tritium dans des zones supposées « non influencées ».

Il est à noter que la distinction « sous influence » et « hors influence » est très relative : en effet, les résultats des études prospectives engagées par l'IRSN sur le Puy-de-Dôme en 2007 montrent que l'activité du tritium dans la vapeur d'eau (eau des nuages, prélèvements entre 500 m

à 1500 m d'altitude) présente de fortes fluctuations en fonction de l'influence des rejets d'installations émettrices de tritium (i.e., Valduc, à 250 km), passant d'une vingtaine d'UT (2 à 3 Bq/L) à une centaine d'UT (11,6 Bq/L). Les activités de tritium dans les eaux de pluie, mesurées par d'autres équipes en 2001-2002 variaient de 4 à 20 UT (0,4 à 2,4 Bq/L) en Hongrie, et de 1 à 3 UT (0,14 à 0,37 Bq/L) en Espagne (Villa and Mangon, 2004). Par ailleurs, la valeur de référence citée pour les eaux de pluie de l'hémisphère nord est de 5 UT en hiver et le double durant l'été (IAEA/WMO, 2006). Ceci indique, d'une part que le bruit de fond mesuré « hors influence » peut en réalité être influencé par des installations lointaines, d'autre part qu'il est sujet à des fluctuations pouvant atteindre un facteur 2 à 6.

En milieu aquatique, l'origine du tritium présent dans l'environnement n'est pas liée aux seuls rejets des installations nucléaires. D'autres industries ont en effet utilisé ou continuent d'utiliser du tritium pour des activités non nucléaires : c'est le cas par exemple de l'industrie horlogère qui utilisait des peintures luminescentes pour les aiguilles des montres.

Ainsi, les résultats présentés dans le tableau 5.1 fournissent des gammes de variation relativement larges tant dans les zones « hors influence » que dans les zones vraisemblablement sous influence vraisemblable. On note néanmoins que, dans la plupart des cas, les activités mesurées pour les zones sous influence vraisemblable des rejets atmosphériques et des rejets liquides sont, comme attendu, supérieures à celles obtenues dans les zones « hors influence ».

Par rapport à des données de la littérature (non exhaustives), on note qu'en général, les activités du tritium libre et du tritium organiquement lié mesurées sur le territoire métropolitain se situent en deçà des résultats obtenus à l'étranger. Seuls des échantillons d'alcool et de sédiments présentent des teneurs en tritium organiquement lié supérieures à celles indiquées dans la littérature. Il est à noter que les échantillons d'alcool concernés ont été prélevés à proximité du site de Marcoule, dans les années 1990 ; quant aux sédiments les plus marqués, ils ont été prélevés dans le haut Rhône, en amont du site nucléaire de Creys-Malville et on peut supposer que les valeurs mesurées sont liées à l'utilisation de tritium dans des industries ne faisant pas partie du cycle du combustible nucléaire (peintures luminescentes pour montres, panneaux de signalisation...).

Tableau 5.1 - Gamme de variation des activités du tritium libre et du tritium lié mesurées par l'IRSN hors et sous influence de rejets de radionucléides dans les différentes matrices des milieux terrestres et aquatiques (données acquises depuis les années 1980, résultats à la date de prélèvement non corrigés de la décroissance physique) et comparaison avec les données de la littérature

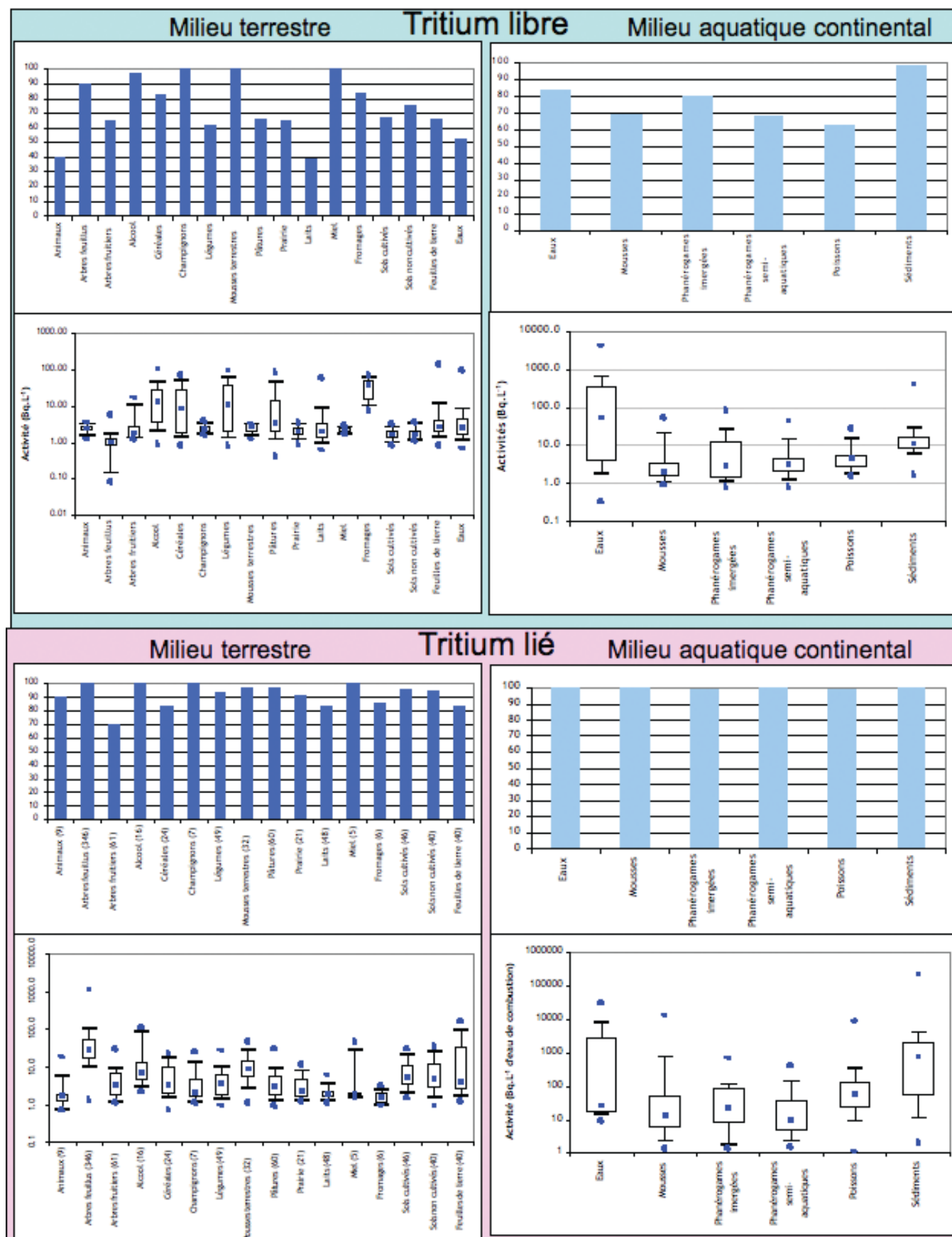
	Références	Matrices	Données IRSN				Données littérature			
			Tritium Libre (Bq.L ⁻¹)		Tritium Lié (Bq.L ⁻¹ d'eau de combustion)		Tritium Libre (Bq.L ⁻¹)		Tritium Lié (Bq.L ⁻¹ d'eau de combustion)	
			Hors Influence	Sous Influence	Hors Influence	Sous Influence	Hors Influence	Sous Influence	Hors Influence	Sous Influence
Terrestre	14	Alcool	1,65-38,16	0,9-110	1,1-9,33	1,24-109,3		10,36-17,39		14,43-18,50
		Céréales	0,83-29,63	1,56-69,26	0,7-14,4	1,6-22,6				
	1 à 4, 20	Eaux de boisson	1,2-6,85	0,7-11,16			0,5-4,9	28,6-38,1		
	5 à 8	Feuilles d'arbres	1-5,4	1,63-11,01	1,34-45,63	1,53-66,35	1,04-4,87	104-9072		1,34-8303
		Feuilles de lierre	0,81-2,82	1,6-134,5	0,77-2,45	0,94-100,14				
		Fruits	1,34-2,16	0,9-16,96	1,51-17,34	1,1-29				
	10 et 13	Lait	0,64-37	0,72-56,44	0,82-6,16	0,18-46,37	2	9,6		
		Légumes	0,8-17,49	1,41-45,96	1-13,06	1-16				
		Mousses	1,28-3,29	1,86-3,13	3,48-20,8	2,15-45,2				
	11	Pâtures	0,9-55,55	0,42-86,90	0,9-8,98	1,1-30		875-1343 ¹		
	9 à 12	Sols	0,8-1,8	1,1-3,52	1,43-35,19	1-34,2		65-1000	45-58,9	110-2405
Aquatique	1, 2, 4, 5, 10 et 15 à 23	Eaux	0,92-83,2	0,33-4200	11,8-30200	8,66-8910	0,3-16	0,86-7905		
	5	Mousses	0,93-17,3	1-64,5	1,5-13100	1,33-3640		118-4477 ²		936-7570
	5	Phanérogames	0,8-41,7	0,8-82,8	1,48-184	1,69-852				
	5	Poissons	0,78-27,08	0,8-17,6	1,1-1320	1,4-8780		5091-13383		570-120000
	24	Sédiments	1,69-30	1,92-413	2-226000	2,54-17200			14,2-41,9	10-3220

¹ Les données compilent des résultats obtenus dans de l'herbe et dans des aiguilles de pin, sans distinction de matrice (Miljevic et al., 2000). ² Dans la littérature consultée il n'y a pas de distinction entre mousses et phanérogames, contrairement à ce qui est pratiqué par l'IRSN.

Liste des références bibliographiques consultées par matrice :

- | | |
|---|--|
| <p>1 ACRO 2003 ;
 2 Palomo et al. 2007 ;
 3 Xiang et al. 2007 ;
 4 Makijani et Boyd 2004 ;
 5 Easton et Murphy 1991 ;
 6 Ichimasa et al. 2000 ;
 7 Pointurier et al. 2003 ;
 8 Kim et al. 1998 ;
 9 Ferenbaugh et al. 2002 ;
 10 Fan et al. exeeff 2006 ;
 11 Miljevic et al. 2000 ;
 12 Site Internet : lbl.gov/ehs/esg/98ser/98serWEBch08.html ;
 13 Site Internet : pnl.gov/env/Food_and_Farm_Products.html ;
 14 Site Internet : pnl.gov/env/Food_2.html ;
 15 Belot et al., 1996 ;
 16 Tort et al. 1997 ;</p> | <p>17 OFSP 2007 ;
 18 Sanchez-Cabeza et al. 2000 ;
 19 Baeza et al. 2001 ;
 20 Radwan et al. 2001 ;
 21 Ueda et al. 2006 ;
 22 Bolsunovsky et Bondareva 2003 ;
 23 Site Internet : pnl.gov/env/Surface-Water_Surveillance.html#0.2.HG
 LTOV.3RSP5L.GBCIBD.2. ;
 24 Morris 2006</p> |
|---|--|

Figure 5.2 - Pourcentage des résultats d'analyse du tritium libre (HTO, en haut) et du tritium lié (OBT, en bas) supérieurs à la limite de détection dans les échantillons du milieu terrestre (à gauche) ou du milieu aquatique continental (à droite) et « Boîtes à moustaches » (voir explication en annexe 1) des résultats obtenus pour les échantillons (compilation des données de l'IRSN).



D'une manière générale, les activités de tritium diminuent depuis une quinzaine d'années. Aujourd'hui, la quantification des marquages en milieu continental imputables aux installations nucléaires devient délicate, car les valeurs à mesurer sont proches du bruit de fond local.

Les chroniques temporelles des mesures des activités HTO et OBT dans l'environnement français sur la période 1990-2007 sont représentées sur la figure 5.2. Les résultats incluent des mesures réalisées dans l'environnement hors de toute influence de rejets et des mesures sous influence vraisemblable (zones sous les vents dominants autour de sites EDF), à l'exclusion des zones sous influence directe de Marcoule et de Valduc.

Les figures 5.3 a et 5.3 b regroupent les valeurs des activités du tritium HTO et des activités du tritium OBT en Bq/L, pour les échantillons biologiques ³ prélevés en milieu terrestre ; la figure 5.3 c présente les valeurs d'activité du tritium OBT dans la couche superficielle des sols. Les valeurs sont entachées d'incertitudes de mesure importantes, qui atteignent en moyenne 36 % pour le tritium HTO et 27 % pour OBT ; la limite de détection est de l'ordre de 1,4 Bq/L pour les deux fractions.

Compte tenu des faibles niveaux mesurés (proches des limites de détection), les observations qui suivent sont indicatives. On constate de façon générale que :

- tous échantillons confondus, le nombre des mesures inférieures au seuil de détection est en constante augmentation ; les valeurs supérieures au seuil de détection sont plus nombreuses pour le tritium OBT que pour le tritium HTO ;
- l'activité de tritium HTO dans les échantillons biologiques diminue avec une période effective ⁴ de l'ordre de 15 ans, valeur voisine de la période radioactive du tritium. La plupart des valeurs récentes sont de l'ordre de 1 à 2 Bq/L ;
- l'activité de tritium OBT dans les échantillons biologiques diminue avec une période effective de l'ordre de 6 ans ; quelques échantillons présentent encore en 2006-2007 des concentrations supérieures à 5 Bq/L mais la plupart des valeurs sont de l'ordre de 1 à 2 Bq/L ;
- l'activité de tritium OBT des sols diminue avec une période effective de l'ordre de 5 ans, que l'on peut considérer équivalente à la précédente.

Ces résultats tendent à montrer qu'il n'y a pas de bioaccumulation du tritium dans les écosystèmes continentaux, dans la mesure où les activités du tritium OBT décroissent plus vite que la période radioactive du tritium et que les activités du tritium dans les matrices biologiques (exprimées en Bq/L) sont dans la gamme des valeurs observée dans les eaux de pluie. Les rares échantillons (feuilles d'arbre) qui présentent actuellement, des activités de tritium OBT un peu plus élevées que la moyenne ont été prélevées dans des stations probablement influencées par une activité ambiante de tritium plus élevée, actuelle ou passée ; les végétaux pérennes ont la possibilité de retenir le tritium organique dans leurs organes persistants (troncs et racines des arbres, racines et mat de prairie) et on peut avancer l'hypothèse *non vérifiée* qu'ils peuvent transférer une partie de ce tritium vers les feuilles, au fil du temps. Il y aurait donc une possibilité de rémanence dans ce type de végétaux, telle que décrite au paragraphe 2.2.3.

Cette conclusion, tirée d'observations faites sur des échantillons divers émanant de différentes stations, ne doit être considérée que comme une tendance générale. Elle mériterait d'être confortée par des observations plus fines, comprenant davantage de résultats de mesure supérieures aux limites de détection.

a) Tritium libre (Bq/L d'eau de distillation).
Environ 410 échantillons dont 64 %
présentent des valeurs supérieures au seuil
de détection. Valeurs à la date de mesure.

b) Tritium lié à la matière organique
(Bq/L d'eau de combustion).
Environ 375 échantillons dont 90 %
présentent des valeurs supérieures au seuil
de détection

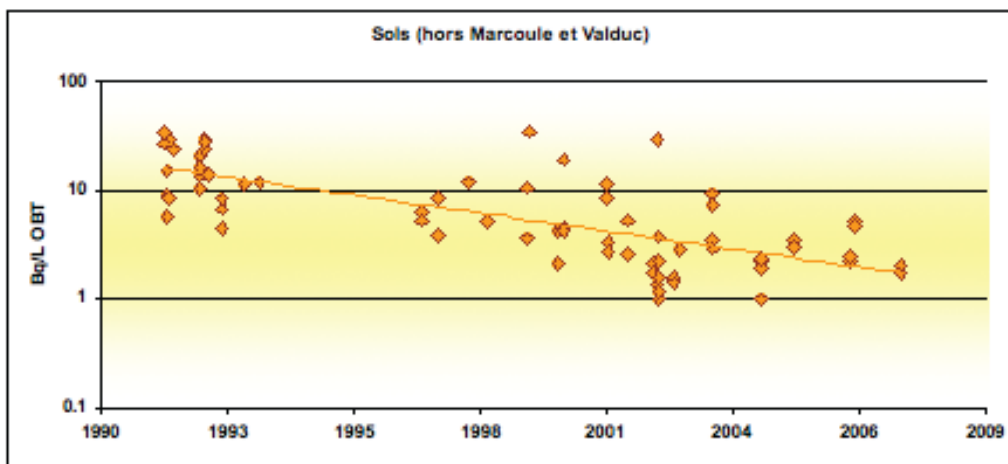
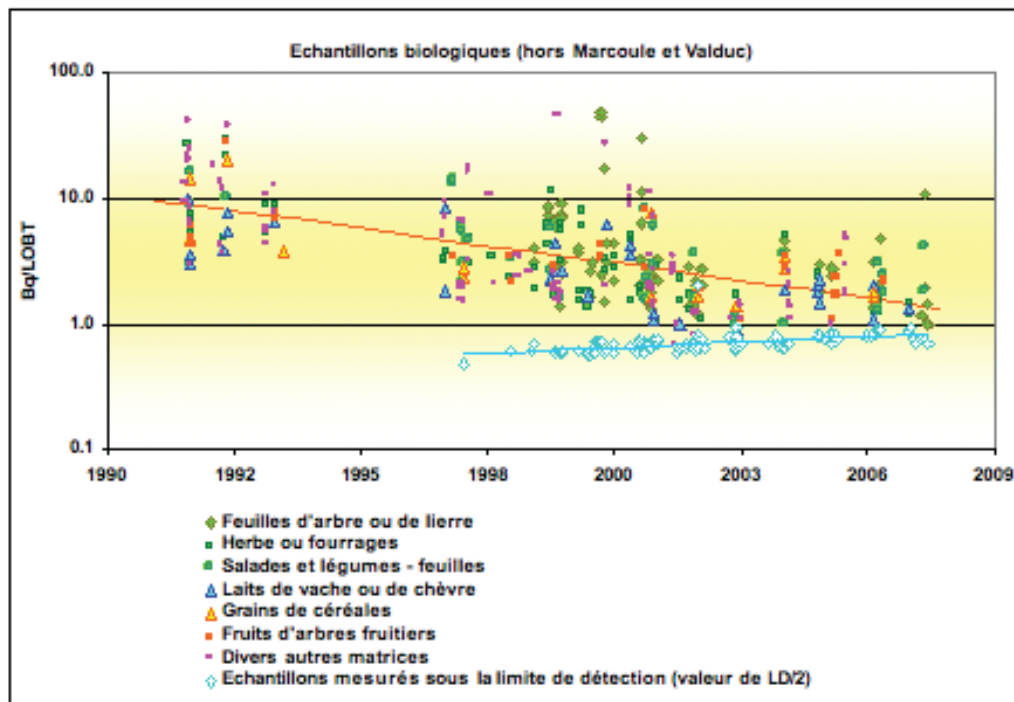
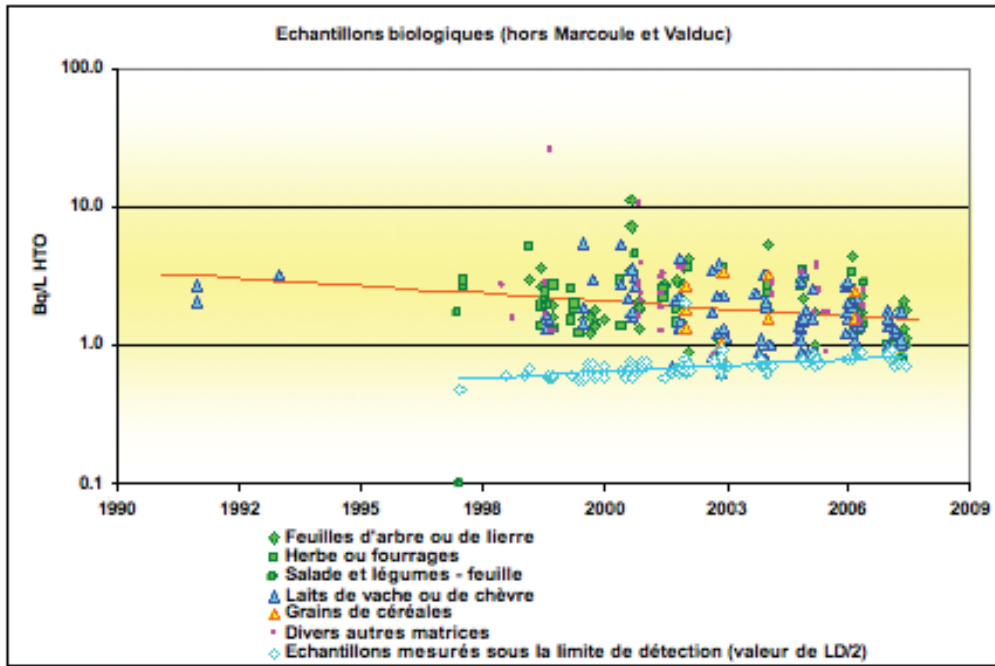
Le tritium lié tel que mesuré ici correspond
à l'ensemble du tritium organiquement lié
échangeable et non échangeable. Les valeurs
sont à la date de mesure.

c) Tritium lié dans les sols (0-10 cm)
(Bq/L d'eau de combustion).
Environ 100 échantillons dont 100 %
présentent des valeurs supérieures au seuil
de détection. Valeurs à la date de mesure.

³ Herbe, feuilles d'arbres, feuilles de lierres, blé, salade, lait...

⁴ La période effective est déduite de l'ajustement d'une fonction exponentielle aux données d'une chronique de mesure, soit : ${}^3\text{H}(t) = {}^3\text{H}(t = 0) 2^{-t/T_{\text{eff}}}$; en général, les coefficients de détermination R² sont faibles, en raison de l'ajustement à un modèle, inévitablement simplificateur, la dispersion des valeurs inhérente aux mesures d'échantillons prélevés (regroupement de tous types d'échantillons, variabilité naturelle et artefacts lors des phases de prélèvement, traitement et mesure) et la brièveté de la chronique (une quinzaine d'années), du même ordre que la période radioactive du tritium (12,32 ans).

Figure 5.3 - Chroniques de mesures du tritium dans l'environnement (données acquises par l'IRSN dans le cadre des études radioécologiques pour EDF et des études OPERA).



5|1| Concentrations caractéristiques en milieu marin

5|2|1| Niveaux actuels et évolutions de la concentration de tritium dans les océans

La concentration naturelle de tritium dans les eaux océaniques de surface devait être d'environ 0,1 Bq/L (ou 100 Bq.m⁻³) avant 1945. Elle a été plus que doublée du fait des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

Les apports industriels, en particulier ceux des usines de traitement des combustibles usés, sont actuellement les principales sources de tritium dans les écosystèmes marins. Plusieurs campagnes océanographiques menées par l'IRSN ont permis de cartographier les marquages en tritium dissous dans le proche Atlantique en 1994, 1998 et 2000 (Mer Celtique, Mer d'Irlande, Manche, Fig. 5.4). Les mesures ont été réalisées par enrichissement électrolytique et par décroissance de l'hélium-3 (CEA/DAM et Tritium Laboratory à Miami). Les résultats montrent clairement l'influence des rejets des usines de traitement de combustibles usés de La Hague en Manche et de Sellafield en Mer d'Irlande. Les activités volumiques mesurées varient de 0,3 à 10 Bq/L (soit 300 à 10 000 Bq.m⁻³) dans ces mers. En dehors de l'influence de ces usines, les contributions des autres installations nucléaires sont difficiles à déceler par les mesures de surveillance. La mise en évidence de l'influence des rejets de tritium des centrales nucléaires nécessiteraient la mesure de concentrations inférieures à 1 Bq.L⁻¹ ce qui n'est pas pratiqué de manière usuelle. A proximité de l'émissaire de rejet de l'usine de La Hague, qui est la principale source de tritium en Manche,

l'activité volumique moyenne de tritium mesurée dans l'eau de mer à la côte est d'environ 10 Bq.L⁻¹. Parmi les 14 000 mesures effectuées au large, dans le panache de rejet de l'émissaire, l'activité mesurée la plus élevée est de 3600 Bq.L⁻¹, correspondant à un rejet effectué une heure plus tôt.

Depuis 1998, le nombre des campagnes de mesure des radionucléides dans les mers et les océans a fortement diminué. L'IRSN a pu obtenir des prélèvements lors de campagnes réalisées par des scientifiques français et étrangers (campagnes ARCANE, CIROLANA, OVIDE). Elles ont permis de préciser le bruit de fond des eaux de surface de l'Atlantique Nord (Fig. 5.5). Celui-ci est en baisse régulière du fait de la diminution des retombées atmosphériques des essais nucléaires. Les eaux de surface de l'Atlantique Nord ont présenté des activités volumiques de 131 à 164 Bq.m⁻³ en 2002, et de 101 à 125 Bq.m⁻³ en 2004. Ces mesures ont mis en évidence le retour des eaux marquées par les rejets industriels européens dans les eaux arctiques, le long des côtes du Groenland (215 – 377 Bq.m⁻³).

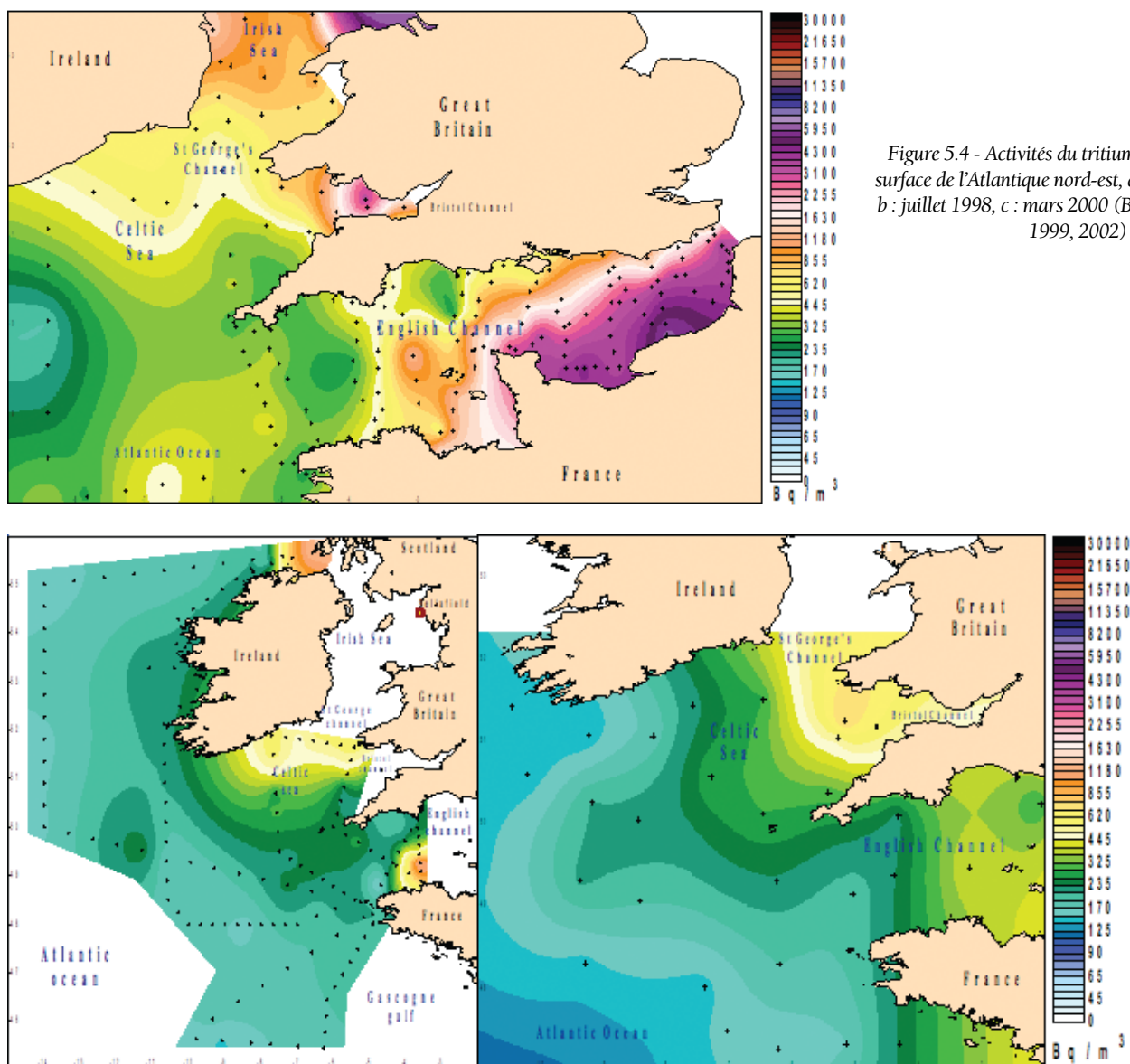
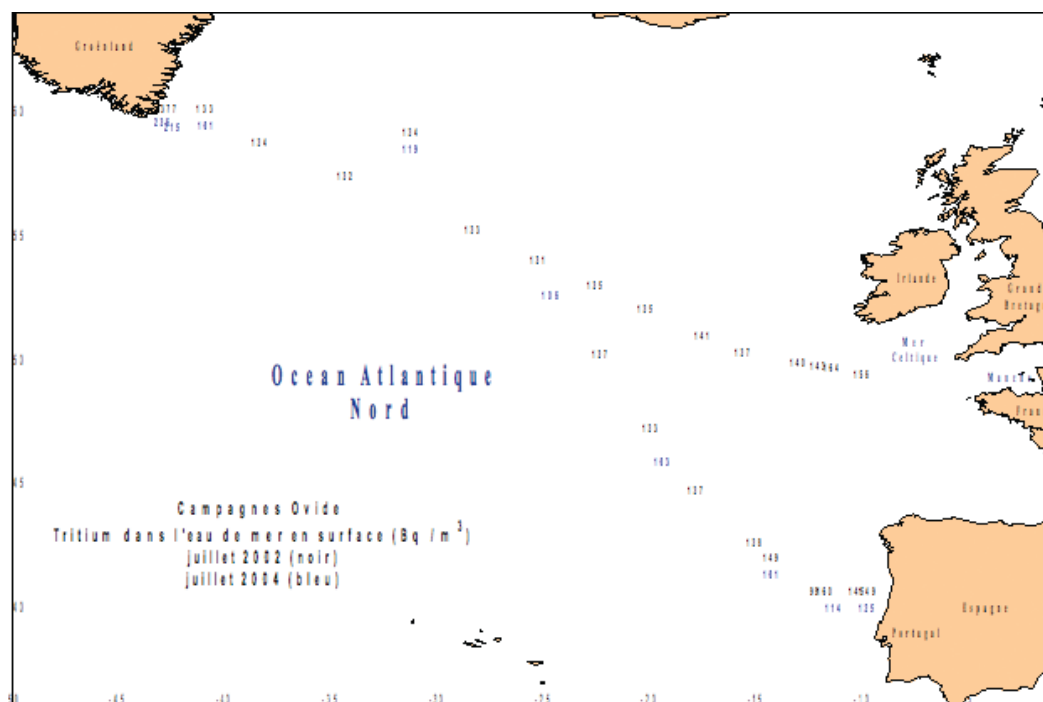


Figure 5.5 - Mesures de l'activité du tritium dans les eaux de surface de l'Atlantique Nord, campagnes OVIDE 2002 et 2004



Les concentrations de tritium en profondeur, le long des côtes du Portugal, sont très basses car les eaux prélevées résultent du déplacement des eaux en provenance du Pacifique qui sont remontées vers le Nord le long des côtes africaines (conveyor belt, Fig. 5.6). C'est une des masses d'eaux marines les plus anciennes avec des activités volumiques de tritium qui descendent jusqu'à moins de 2 Bq.m⁻³. Un simple calcul de décroissance du tritium indique que ces eaux ont quitté la surface depuis plus de 50 ans.

Des concentrations de tritium inhabituellement élevées, allant de 210 à 278 Bq.m⁻³, ont été mesurées dans quatre échantillons d'eau prélevés en profondeur en 2002, au large des côtes du Portugal. Une estimation grossière du volume d'eau ainsi marqué donne une quantité de tritium en excès de l'ordre de 2.10¹⁵ Bq. Cette observation n'a pas pu être confirmée en 2004 et une pollution par le tritium des échantillons de 2002 au cours du processus analytique ne peut pas être exclue. Globalement, en raison du faible nombre de données océanographiques récentes et de la rareté des mesures de tritium à bas niveau, il n'est pas possible de connaître précisément la distribution du tritium dans la mer, notamment en profondeur ; en particulier, le devenir du tritium en milieu marin n'est pas surveillé sur la majeure partie des côtes françaises (Méditerranée, Golfe de Gascogne, Manche occidentale).

Pourtant, la connaissance du bruit de fond des eaux atlantiques permettrait d'apprécier l'influence réelle des rejets des installations nucléaires, qui pourraient engendrer un marquage du même ordre de grandeur que ce bruit de fond. A l'heure actuelle, ce marquage n'a pu être évalué que par des simulations numériques de la dispersion du tritium en mer (Fig. 5.7).

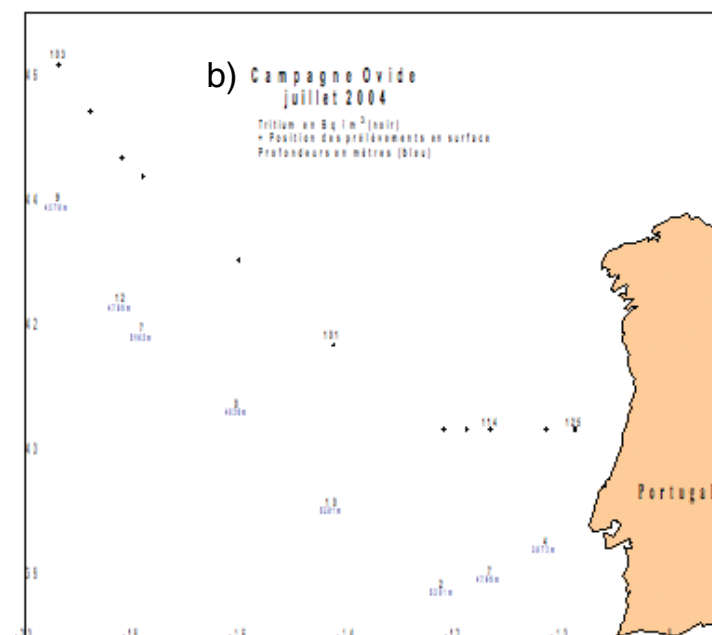
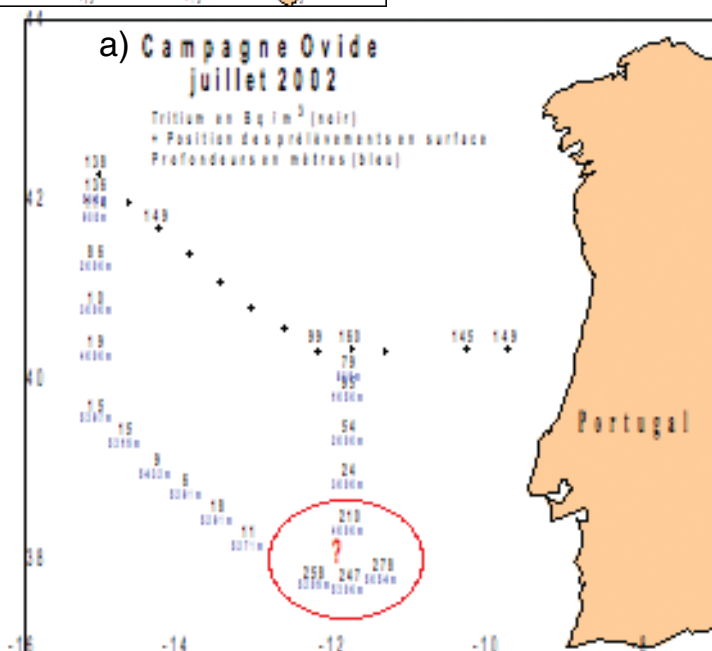
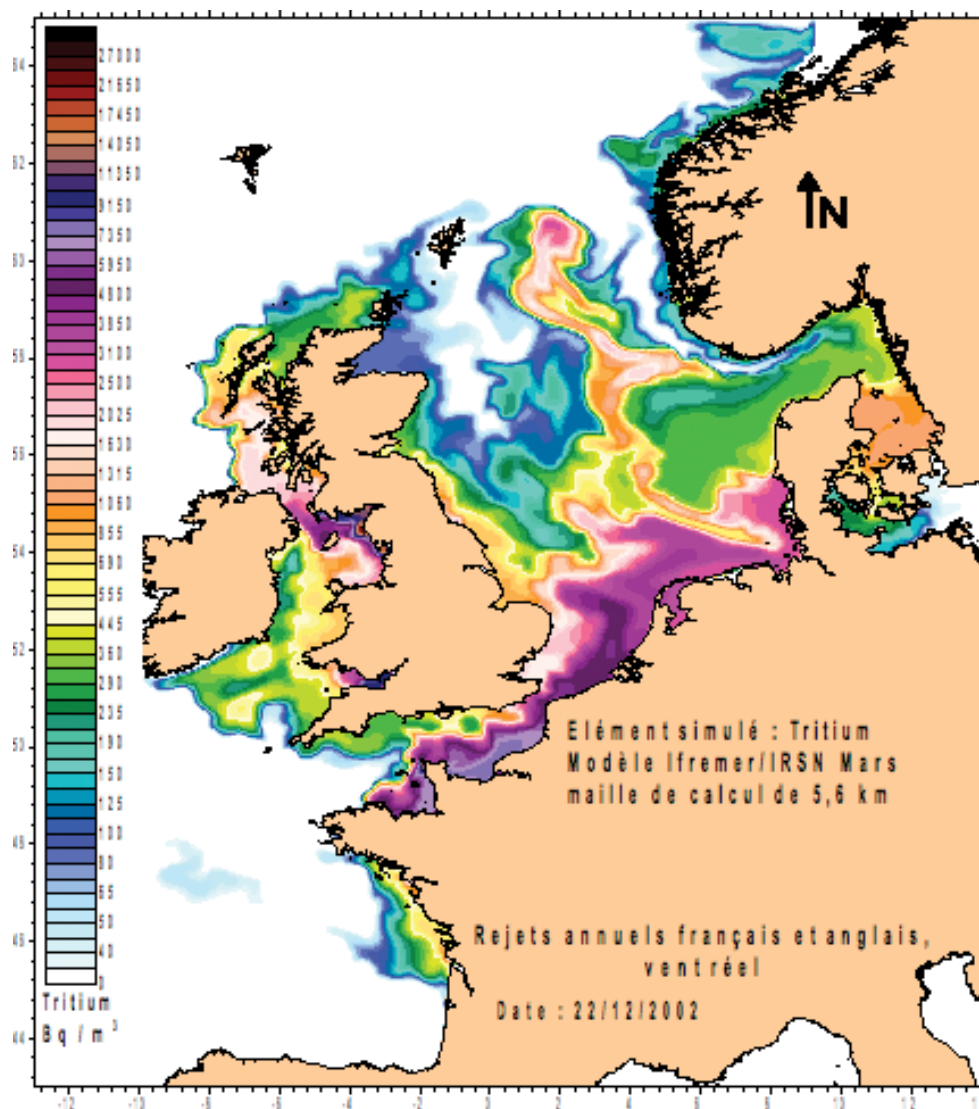


Figure 5.6 - Activité du tritium dans l'eau de mer en profondeur au large du Portugal, campagnes OVIDE 2002 (a) et 2004 (b). 4 points de prélèvement de la campagne 2002 (dans l'ensemble rouge) montrent des concentrations de tritium nettement plus élevées que celles des autres points, non retrouvées lors de la campagne de 2004. Cette anomalie est inexpliquée et pourrait être due à une contamination des échantillons lors de leur analyse.

Figure 5.7 - Simulation de la dispersion du tritium rejeté par les installations nucléaires françaises et anglaises.



5|2|2| Niveaux actuels et évolutions des activités volumiques de tritium dans les organismes marins - rapports OBT/HTO observés

Évolution spatiale des activités volumiques de tritium dans les algues sur le littoral ouest. Une étude réalisée par l'IRSN (Masson, 2006) en 2001-2002 a permis de suivre les évolutions spatiales des activités volumiques maximales du tritium libre dans l'eau de mer et du tritium organiquement lié dans les algues le long des côtes françaises de la Manche. Les résultats, portés sur la figure 5.8, montrent que par rapport au bruit de fond enregistré dans l'Atlantique (Concarneau), on détecte l'influence des rejets de tritium de l'usine de traitement des combustibles usés de La Hague en Manche, à partir du golfe normand breton.

L'influence de l'usine est prépondérante le long des côtes du Nord-Cotentin avec des activités volumiques maximales atteignant une dizaine de Bq.L^{-1} d'eau de combustion dans les algues (OBT). A l'ouest du golfe normand breton, les activités volumiques de tritium organiquement lié sont proches des limites de détection ($1,2 \text{ Bq.L}^{-1}$). En Manche orientale et dans le détroit du Pas de Calais, les activités volumiques varient de $1,2$ à $6,5 \text{ Bq.L}^{-1}$.

Figure 5.8 - Concentrations en tritium libre (HTO) et en tritium organiquement lié (OBT) mesurées dans l'eau de mer (Bq/L) et les algues (Bq/L eau de combustion) entre Concarneau et Gravelines au cours des années 2001-2002 (données IRSN).

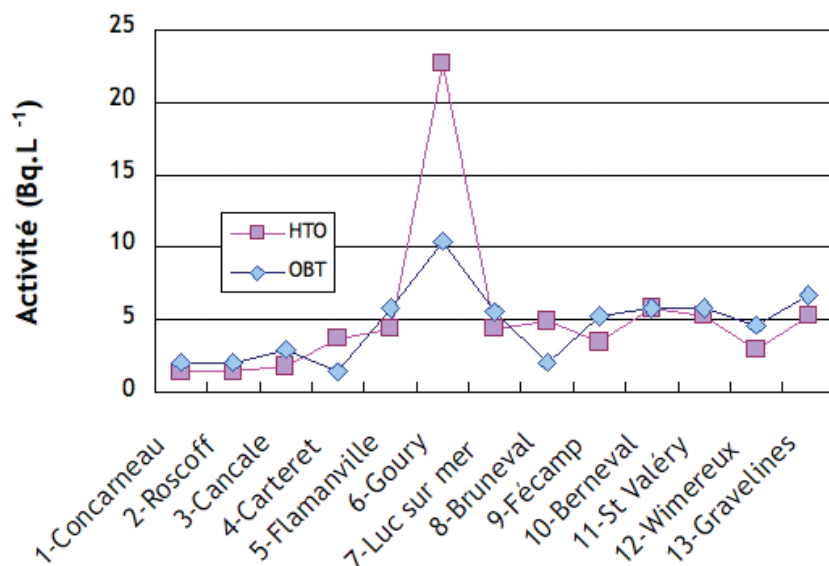


Tableau 5.2 - Concentrations en tritium libre (HTO) et en tritium organiquement lié (OBT) mesurées dans divers organismes marins animaux et végétaux prélevés en 1997 et en 2006-2007 dans le Nord-Cotentin.

Nature	Espèce	Lieu	Date	HTO	OBT	Rapport OBT/HTO
Mollusque	Ormeau	Omonville La Rogue	21/07/1997	14,9	10,6	0,7
Crustacé	Tourteau	Omonville La Rogue	21/07/1997	11,7	11,6	1,0
Mollusque	Bigorneau	St Germain des Vaux	21/07/1997	12,7	9,3	0,7
Mollusque	Bigorneau	Herquemoulin	21/07/1997	19,3	13,1	0,7
Crustacé	Tourteau	Jobourg	21/07/1997	12,5	16,0	1,3
Poisson	Maquereau	Omonville La Rogue	21/07/1997	11,8	11,8	1,0
Mollusque	Ormeau	Herqueville	21/07/1997	15,9	10,8	0,7
Algue	Fucus serratus	Carteret	01/06/2006	3,9	5,0	1,28
Algue	Fucus vesiculosus	Dielette	01/06/2006	11,0	11,2	1,02
Algue	Fucus serratus	Dielette	01/06/2006	9,5	12,5	1,32
Algue	Fucus vesiculosus	Goury	01/06/2006	11,3	12,4	1,10
Algue	Fucus serratus	Goury	14/06/2006	10,7	12,3	1,15
Algue	Fucus serratus	Sciotot	14/06/2006	8,1	6,6	0,81
Crustacé	Homard	Carteret	24/01/2007	10,8	8,3	0,77
Crustacé	Homard	Flamanville	26/01/2007	10,1	9,1	0,90
Mollusque	Patelle	Carteret	16/06/2006	4,0	4,2	1,05
Mollusque	Chair	Dielette	22/06/2006	17,4	14,2	0,82
Mollusque	Bulot	Flamanville	20/02/2007	5,1	9,5	1,86
Mollusque	Patelle	Goury	22/06/2006	16,1	13,1	0,81
Poisson	Plie	Carteret	02/02/2007	5,8	8,6	1,49
Poisson	Vieille	Carteret	24/01/2007	6,9	9,7	1,41
Poisson	Sole	Flamanville	26/01/2007	13,5	13,8	1,02
Poisson	Vieille	Flamanville	26/01/2007	14,0	13,3	0,95

Rapports OBT/HTO observés dans des organismes marins animaux ou végétaux. Une première campagne de mesures ciblées sur la région du Nord-Cotentin a été menée en 1997 pour répondre à une demande du district de La Hague (Maro *et al.*, 1998). Le rapport moyen OBT/HTO est de $0,9 \pm 0,2$. Un autre ensemble de données a été obtenu en 2006-2007 dans le cadre du deuxième bilan radioécologique décennal de la centrale de Flamanville (Masson, 2008). Les activités volumiques moyennes de HTO et d'OBT (Tab. 5.2) mesurées dans différentes espèces marines (algues, mollusques, crustacés, poissons) sont, comme précédemment, de l'ordre de 10 Bq.L^{-1} de tritium libre (HTO) et de tritium dans l'eau de combustion (OBT), le tritium étant présent à plus de 85 % sous forme libre (HTO) dans ces organismes marins. Le rapport moyen OBT/HTO est de $1,1 \pm 0,3$.

Comme l'activité moyenne du tritium dans l'eau de mer à la côte était de 10 Bq.L^{-1} , le facteur de concentration moyen est donc de l'ordre de 1. **Ainsi, ces différentes mesures de tritium faites sur les côtes de la Manche durant les deux dernières décennies ne mettent pas en évidence un phénomène de bioaccumulation du tritium dans les organismes marins.**

Des mesures de tritium organiquement lié effectuées dans des organismes marins au début des années 80, dans le cadre du point zéro radiologique de la centrale de Flamanville (IPSN, 1984), donnent des résultats significativement différents de ceux observés plus récemment. En effet, ces mesures effectuées en 1981 et 1982 montrent (Tab. 5.3) des activités de tritium organiquement lié dans des algues, des mollusques, des crustacés et des poissons comprises entre plusieurs dizaines et plus d'une centaine de Bq.L^{-1} .

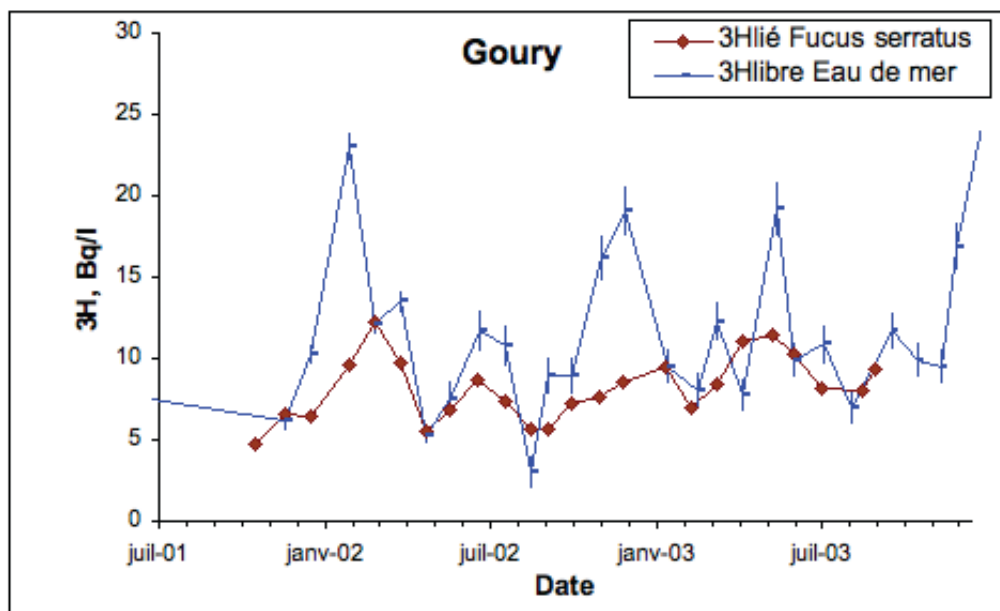
Il n'est pas possible de déterminer un facteur de concentration car ces mesures de tritium lié n'ont pas été accompagnées de mesures de tritium libre. Il est cependant probable que l'activité moyenne du tritium dans l'eau de mer ne devait pas dépasser la valeur de 10 Bq.L^{-1} car les rejets de tritium de l'usine de la Hague étaient moins importants à cette époque que durant la période 1990-2000. Ces activités plutôt élevées pourraient s'expliquer par la présence, dans les eaux du Nord-Cotentin au début des années 80, de molécules organiques tritiées qui, une fois incorporées par les organismes, ont tendance à se fixer durablement sur la matière vivante (rémance du tritium). On verra plus loin que des observations similaires ont été récemment faites au Royaume-Uni. Toutefois, compte tenu de l'absence de données suffisantes permettant d'interpréter ces observations anciennes et de la non-identification de la source d'émission de ces éventuelles molécules organiques tritiées, cette explication doit être considérée avec une extrême prudence.

Tableau 5.3 - Concentrations en tritium organiquement lié (OBT) mesurées dans divers organismes marins animaux et végétaux prélevés en 1981 et 1982 dans le Nord-Cotentin.

Nature	Espèce	Station	Date	OBT (Bq.L ⁻¹ EC)
Algues	Fucus	Diélette	06/1981	26 ± 7
	Fucus	Diélette	10/1981	41 ± 8
	Fucus	Sciotot	06/1981	37 ± 7
Mollusques	Patelle	Diélette	06/1981	44 ± 7
	Patelle	Diélette	10/1981	174 ± 3
	Patelle	Sciotot	06/1981	26 ± 7
Crustacés	Homard	Flamanville	08/1981	185 ± 7
	Homard	Flamanville	08/1982	152 ± 8
Poissons	Vieille	Flamanville	04/1981	174 ± 7
	Vieille	Flamanville	04/1982	126 ± 8

Comportement du tritium dans les algues brunes. Une étude spécifique a été menée entre 2001 et 2004 par l'IRSN (Fiévet, données non publiées) pour estimer les paramètres cinétiques d'échange du tritium entre l'eau de mer et la matière organique de l'algue brune *Fucus serratus*. L'activité volumique du tritium dans l'eau de mer a été suivie mensuellement à Goury (situé à 5 km du point de rejet de l'usine de traitement de combustibles usés de La Hague), en parallèle avec celle du tritium organiquement lié de l'algue (OBT). Les résultats sont portés sur la figure 5.9.

Figure 5.9 - Évolution des activités volumiques du tritium organiquement lié dans *Fucus serratus* (Bq/L eau de combustion) et du tritium libre dans l'eau de mer (Bq/L) à Goury (données IRSN)



A proximité du point de rejet de l'usine de traitement de combustibles usés de La Hague, les variations des activités volumiques de tritium observées dans l'eau de mer suivent les évolutions des rejets et sont de forte amplitude. Par contre, les variations sont considérablement atténuées dans l'algue. Ceci s'explique par une cinétique plus faible des échanges de tritium entre l'eau et la matière organique de l'algue (pour partie contrôlée par la photosynthèse) comparée à celle des variations brutales des activités volumiques de tritium dans l'eau de mer. Ce phénomène a été observé à Goury pour d'autres radionucléides, comme le ¹³⁷Cs (Fiévet and Plet, 2003) et le ¹⁴C (Fiévet *et al.*, 2006). Le rapport moyen (OBT dans l'algue)/(HTO dans l'eau de mer) est assez proche de 1, mais ce rapport déterminé par des mesures faites à un instant donné peut s'écarter nettement de l'unité, s'expliquant par le déséquilibre induit par les différences de cinétique évoquées précédemment. Une observation attentive du graphique montre par ailleurs que les activités du tritium organiquement lié de l'algue sont légèrement inférieures à celles du tritium de l'eau de mer. Cette tendance pourrait s'expliquer par l'influence des périodes

d'exondation de cette algue intertidale, pendant lesquelles des échanges pourraient avoir lieu avec l'eau de pluie ou de l'atmosphère, dont l'activité volumique de tritium serait plus faible que pour de l'eau de mer.

Observations sur les côtes britanniques. Le cas de la baie de Cardiff et de l'estuaire de la Severn illustre bien l'importance cruciale de la forme chimique (spéciation) du tritium dans les rejets liquides. En octobre 1998, la revue britannique *New Scientist* relatait des activités volumiques de

tritium mesurées dans des espèces marines (poissons plats, moules) dépassant de plus de cent fois l'activité volumique du tritium dans l'eau de mer (Edwards, 1998). Tandis que les valeurs étaient à l'époque inférieures à 100 Bq.L⁻¹ dans l'eau de mer, une valeur de 37 800 Bq.kg⁻¹ frais avait été constatée dans un poisson plat.

L'estuaire de la Severn reçoit les rejets de l'usine Nycomed Amersham plc de Cardiff qui synthétise des molécules tritiées pour l'industrie pharmaceutique (acides aminés, acides gras, lipides, précurseurs d'acides nucléiques, hydrates de carbone, prostaglandines, vitamines, stéroïdes, alcaloïdes...). L'usage de ces molécules marquées est d'autant plus efficace que le rapport isotopique T/H est plus élevé. Lorsque ces composés ou des produits intermédiaires se

retrouvent dans le milieu naturel, même à très faibles concentrations, ils ont toutes chances d'avoir une forte affinité pour la matière organique, ce d'autant plus s'ils sont hydrophobes. Ils peuvent alors être incorporés lors de l'alimentation des animaux et ainsi, le tritium de ces composés peut se fixer préférentiellement dans la matière vivante, entraînant un facteur de concentration très élevé par rapport au tritium libre (HTO) présent dans le milieu de vie de ces organismes. C'est certainement la raison des valeurs très élevées parfois observées dans certaines espèces marines prélevées dans l'estuaire de la Severn et le chenal de Bristol, où des activités massiques de 6.10² Bq.kg⁻¹ sec, 2.10³ Bq.kg⁻¹ sec, et 10⁵ Bq.kg⁻¹ sec ont été mesurées respectivement dans les sédiments de surface chargés en matières organiques, dans les moules et dans les poissons benthiques (sole) (Mc Cubbin *et al.*, 2001; Williams *et al.*, 2001). Les auteurs ont émis l'hypothèse de la formation de matières organiques particulières par sorption des molécules organiques tritiées de l'eau sur les sédiments fins ou d'une transformation bactérienne au sein du lit sédimentaire de surface. Ces particules sédimentaires seraient alors filtrées par les moules

ou ingérées par les poissons vivant en contact avec les sédiments. Le mode de vie et d'alimentation des organismes expliquent les différences des concentrations observées entre les organismes herbivores ou benthiques et les poissons pélagiques beaucoup moins marqués en tritium.

Avec le temps, ce tritium organiquement lié à des concentrations élevées dans les tissus des animaux est recyclé par le métabolisme de l'organisme vivant, et se dilue peu à peu dans l'hydrogène stable lorsqu'il est transformé en eau (eau de mer et eau interne des organismes). Il s'agirait par conséquent d'un phénomène de rémanence relativement local mais dont la manifestation pourrait s'observer au gré des déplacements des espèces mobiles.

Les molécules organiques marquées par le tritium peuvent rester stables lorsqu'elles sont enfouies dans les sédiments. Ainsi Moris (2006) a montré que les activités massiques de tritium le long d'une carotte sédimentaire prélevée dans le marais de la Severn sont corrélées dans le temps avec les activités de tritium rejetées par l'usine d'Amersham. Cet enregistrement chronologique suggère que le tritium organique est retenu pendant plusieurs décennies dans les sédiments après le dépôt, sans perte importante du fait de la conservation de la matière organique.

Depuis quelques années, les rapports du RIFE (Radioactivity In Food and the Environment No.11) concernant la région de Sellafield, font état des activités mesurées dans les poissons plats et les moules de 100-200 Bq.Kg⁻¹ (frais) avec des valeurs similaires en HTO et OBT. Les activités maximales dans l'eau de mer sont voisines de 10 à 30 Bq.L⁻¹. Bien que l'expression en Bq.kg⁻¹ frais ne permette pas de comparer directement les rapports isotopiques entre l'eau de mer et la matière organique dans les espèces étudiées, les gammes de valeurs suggèrent l'existence de formes chimiques de tritium biodisponibles avec un rapport isotopique T/H plus élevé que celui de l'eau de mer et qui se concentrent dans les animaux marins. Rappelons que toutes les mesures du tritium dans l'eau de mer à Sellafield, Bristol ou La Hague concernent le tritium « total » présent dans le prélèvement sans séparation ou distinction des formes chimiques présentes, HTO et OBT, contrairement à ce qui est réalisé lors de la mesure du tritium dans les organismes. Il serait donc nécessaire de mieux caractériser les formes chimiques du tritium dans l'eau de mer, notamment le tritium lié à des molécules organiques (OBT), afin de permettre une interprétation correcte des facteurs de concentration déterminés par des mesures dans les organismes marins.

Bien que les activités de tritium dans les rejets industriels en tritium soient supérieures d'un à deux ordres de grandeurs à celles des autres radionucléides, l'influence des rejets des centrales n'est pas décelable en routine le long des côtes françaises. Seul l'impact des rejets de l'usine de traitement de combustibles usés de La Hague peut être détecté avec des activités volumiques supérieures à 1 Bq.L⁻¹ en Manche orientale.

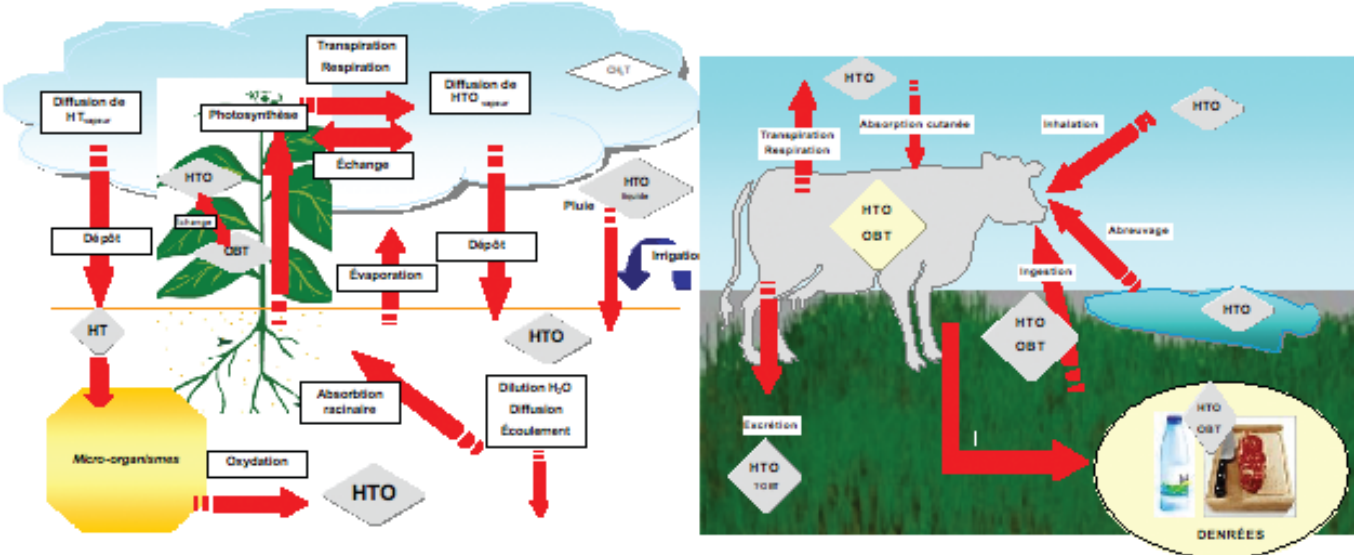
Les mesures effectuées ces deux dernières décennies, dans des organismes marins, sur les côtes du Nord-Cotentin ne montrent pas de phénomène de bioaccumulation. Ce constat conduit à conclure que les rejets de l'industrie nucléaire, dominés par ceux de l'usine de retraitement de combustibles usés de La Hague, ont été durant cette période en très grande majorité sous forme de HTO. Cela n'a probablement pas été toujours le cas car des mesures d'OBT effectuées au début des années 80 dans des organismes marins (algues, crustacés, poisson) montrent des activités relativement élevées en OBT (de quelques dizaines à plus d'une centaine de Bq.L⁻¹). Ces résultats sont à rapprocher de ceux observés récemment dans le chenal de Bristol (U.K.), où il apparaît que de faibles quantités de tritium rejeté sous forme de molécules organiques à fort rapport isotopique T/H peuvent modifier l'équilibre des concentrations en tritium entre l'eau de mer ambiante et les animaux marins qui y vivent, particulièrement pour ceux présentant un mode de vie les mettant en contact chronique avec des sédiments fins chargés en matière organique riches en tritium. Ces exemples de comportement du tritium, à l'origine d'une controverse sur l'existence éventuelle d'une bioaccumulation du tritium, montrent l'intérêt de mieux déterminer les formes chimiques du tritium dans l'eau de mer, notamment le tritium lié à des molécules organiques (OBT), afin de permettre une interprétation correcte des facteurs de concentration calculés à partir des résultats de mesures dans les organismes marins. Ceci apparaît même indispensable lorsque des mesures mettent en évidence des concentrations de tritium élevées dans des organismes.

6 | Transfert du tritium dans les écosystèmes

6 | 1 | Transfert du tritium atmosphérique dans les écosystèmes terrestres

La figure 6.1 présente les principaux processus gouvernant le comportement du tritium au sein des écosystèmes terrestres.

Figure 6.1 - Principaux mécanismes d'évolution des formes tritiées en milieu terrestre aux interfaces air-sol-végétaux et chez les animaux incluant le transfert aux produits alimentaires.



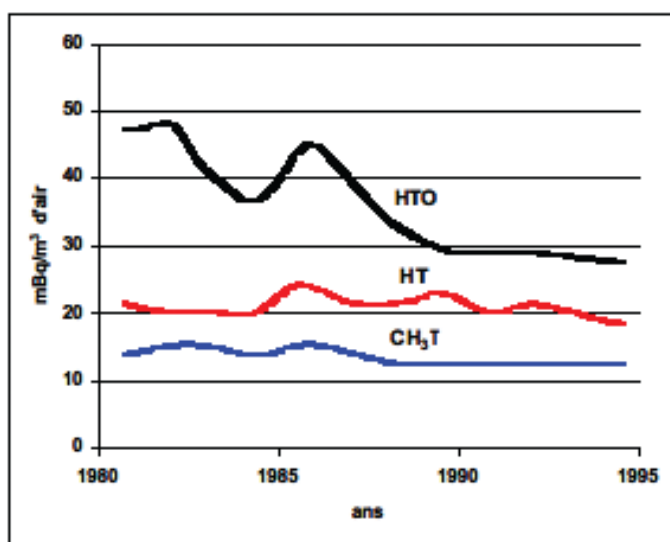
6|1|1 Dispersion atmosphérique du tritium

Les formes connues du tritium présent dans l'atmosphère sont par ordre d'importance décroissante l'eau tritiée (HTO) liquide ou vapeur, l'hydrogène tritié (HT) et le méthane tritié (CH_3T). La dispersion atmosphérique du tritium après un rejet local suit les lois générales de dispersion des autres substances présentes dans l'air. Il existe toutefois deux particularités :

- il existe dans l'atmosphère des molécules d'eau, de dihydrogène (H_2) et de méthane non tritiés⁵ qui se mélangent avec les molécules tritiées émises par les activités industrielles et contribuent ainsi à la dilution du tritium lors de sa dispersion atmosphérique ;
- l'eau atmosphérique peut se trouver soit sous forme gazeuse (vapeur), soit sous forme liquide (gouttelettes des nuages et gouttes de pluie).

La figure 6.2 indique les ordres de grandeur des activités volumiques des différentes formes du tritium, mesurées au Japon entre 1982 et 1994 par Okai *et al.* (1999) ; en 1994, les activités volumiques de HTO sont revenues à un niveau proche de celui qui existait avant les essais atmosphériques d'armes nucléaires, alors que celles de HT et de CH_3T stagnent à des niveaux respectivement de 19 et de 12 Bq/m³, supérieurs au bruit de fond antérieur à 1945. Selon Okai *et al.* (1999), les concentrations actuelles de ces dernières formes du tritium suggèrent que leur transformation en HTO est très lente ou qu'un apport significatif de tritium sous forme de HT et de CH_3T se poursuit encore actuellement.

Figure 6.2 – Activités volumiques des formes tritiées dans l'atmosphère mesurées au Japon par Okai *et al.* (1999).



Le méthane tritié est peu connu ; les valeurs de référence déterminées pour la disparition par oxydation du méthane stable (CH_4) correspondent à une demi-vie de 9,6 ans dans l'atmosphère (ICCP, 2001).

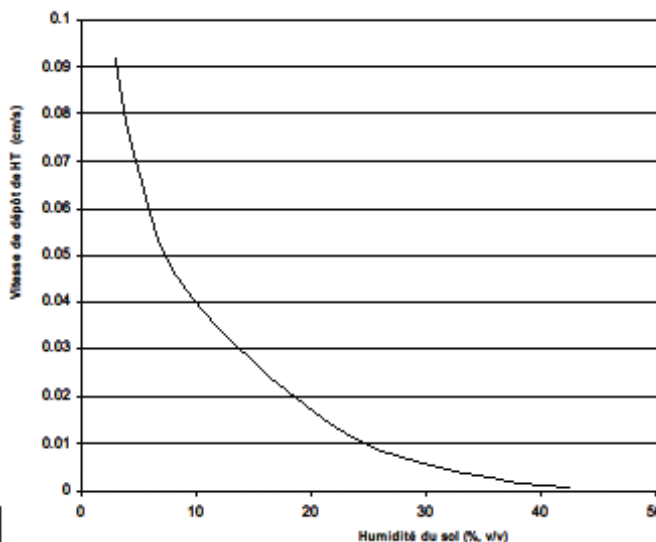
La conversion par oxydation dans l'air de l'hydrogène tritié HT en eau tritiée HTO est réputée faible et suffisamment lente (e.g. demi-vie de 10 ans sur la période 1988-1995 déterminée par Okai *et al.* (1999)) pour être négligeable au sein de l'atmosphère, contrairement à ce qui se passe au niveau du sol.

6|1|2 Dépôt au sol du tritium atmosphérique

L'apport au sol de tritium provenant de l'atmosphère s'effectue par dépôt sec ou humide (pluie). Le dépôt humide ne concerne que la vapeur d'eau, en raison de la faible solubilité du méthane ou de l'hydrogène dans l'eau. Compte tenu du comportement particulier du tritium dans l'interface sol-atmosphère, il est d'usage de parler de vitesse apparente de dépôt, définie comme le solde net du flux de tritium arrivant au sol (Bq/m².s) et de celui réémis du sol vers l'atmosphère.

Cas de l'hydrogène tritié (HT). Les vitesses de dépôt de l'hydrogène tritié, citées dans la littérature varient de deux ordres de grandeur, entre 10^{-5} et 10^{-3} m/s (Belot *et al.*, 1996). Des mesures expérimentales plus récentes aboutissent à des valeurs de $1,3 \times 10^{-5}$ à $3,7 \times 10^{-5}$ m/s (Koarashi *et al.*, 2001). Il semble que le paramètre clé qui détermine la vitesse de dépôt soit l'humidité du sol, fait déjà signalé par Murphy (1990) (Fig. 6.3) et démontré à nouveau par Koarashi *et al.* (2001).

Figure 6.3 - Variation de la vitesse de dépôt de l'hydrogène tritié (Murphy, 1990) en fonction de l'humidité du sol. Pour un sol d'humidité volumique moyenne (15 %), cette vitesse serait d'environ 3×10^{-4} m/s.



Ceci vient du fait que la vitesse apparente de dépôt résulte des deux phénomènes précités (dépôt et réémission) et que les paramètres du sol vont avoir une influence importante sur cette vitesse (porosité, aération...), selon trois mécanismes complémentaires (Ota *et al.*, 2007) :

- le flux de transport de l'air au sol qui varie en raison inverse de la résistance au transport turbulent ;
- le flux de diffusion au sein de l'atmosphère du sol ;
- la décroissance de l'activité volumique de HT dans le sol, au fur et à mesure que l'oxydation microbienne de HT en HTO s'effectue dans la partie supérieure, biologiquement active, du sol.

Ce dernier mécanisme est particulièrement important, puisqu'il transforme un gaz biochimiquement peu réactif en eau tritiée susceptible de suivre tous les cheminements de l'eau sous forme liquide ou sous forme vapeur. Cette oxydation dépend étroitement des caractéristiques du sol à un moment donné. Ota *et al.* (2007) ont montré expérimentalement que le taux de conversion de H_2 en H_2O dépend de l'humidité et de la température du sol. Ce taux est très faible pour les sols secs (< 2 % d'eau) ou humides (> 25 % d'eau) ; il est maximum pour une humidité comprise entre 10 et 15 %. Il augmente exponentiellement avec la température jusqu'à 46 °C, puis s'annule ensuite ; la température de 46 °C est la température supérieure de désactivation des mécanismes microbiens ou enzymatiques. La gamme des valeurs mesurées par Ota *et al.* (2007) va de 1 à 2×10^8 mol/h par g de sol pour des conditions d'humidité et de température moyennes.

La vitesse globale d'oxydation dans le sol indiquée par Belot *et al.* (1996) est de l'ordre de 1 % par seconde, alors que Mishima et Steele (2002) indiquent des valeurs inférieures d'un ordre de grandeur (de 5 à 10 % par minute, mais pour une oxydation dans un local et non à l'air libre).

Pour l'évaluation des conséquences d'un rejet tritié, il est donc essentiel de tenir compte de l'activité rejetée sous forme d'hydrogène tritié, soit directement en tant qu'espèce chimique spécifique, soit à défaut en considérant que tout le tritium est rejeté sous forme d'eau tritiée HTO. Un tel calcul est supposé aboutir en général à un résultat majorant, du fait qu'une partie seulement du HT de l'atmosphère devrait donner lieu à un dépôt au sol et à une oxydation microbienne (Peterson and Davis, 2002). Toutefois, cette hypothèse ne tient pas compte du décalage entre la phase de dépôt initiale

⁵ Les abondances atmosphériques sont estimées en 1998, pour le méthane CH_4 à 1,745 ppb, en augmentation constante, et pour le dihydrogène H_2 à 500 ppb (1 ppb = partie par billion soit 1×10^{-9}), selon ICCP (2001).

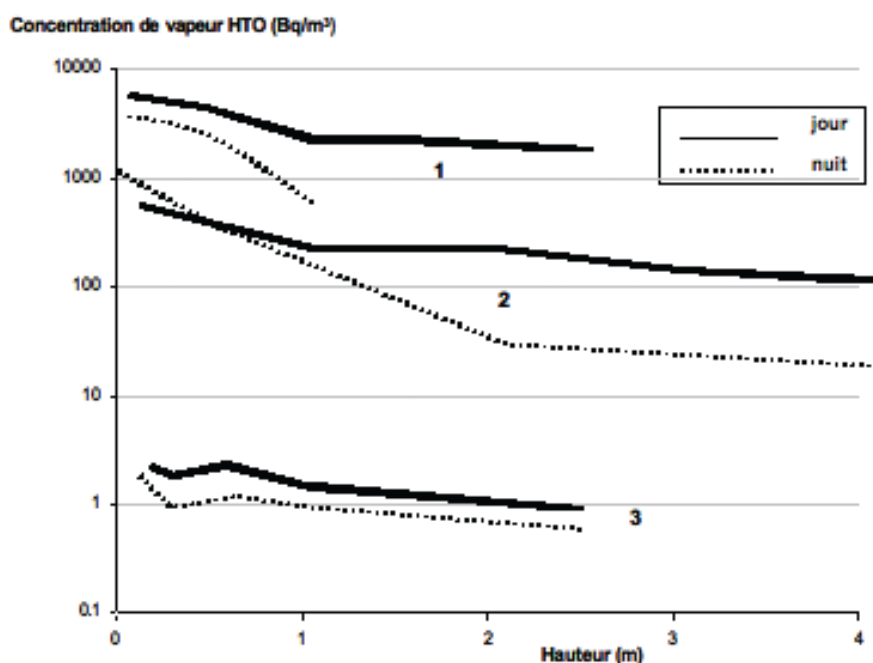
et la phase de réémission et, ne conduit pas forcément à une valeur majoritaire en raison des différences de fonctionnement des végétaux en phase diurne et en phase nocturne (cf. § 6.1.4).

Une fois l'hydrogène tritié oxydé en eau, le tritium peut être réémis dans l'atmosphère, entraînant un gradient vertical de vapeur HTO dépendant de multiples paramètres. Ainsi plusieurs auteurs ont mis en évidence — par des mesures de vapeur d'eau réémises après un rejet expérimental prolongé de HT — que le gradient de vapeur d'eau tritiée (HTO) est plus important la nuit (Fig. 6.4) que le jour, ce qui est attribué à une modification des propriétés physiques (température, humidité) de l'air.

Figure 6.4 - Variation du gradient de HTO à différentes hauteurs au dessus du sol après un rejet expérimental prolongé de HT dans l'air.

D'après :

- (1) Nogushi and Yokoyama, 2003
(2) Brown et al., 1988 (référence citée dans 1)
(3) Murata et al., 1994 (référence citée dans 1)



Vapeur d'eau tritiée. Le dépôt de la vapeur d'eau tritiée (qui peut se produire par temps sec ou par temps humide) se fait par un échange entre la vapeur d'eau tritiée arrivant à l'interface sol-air et la vapeur d'eau déjà présente dans les pores de la couche superficielle du sol. Des modélisations empiriques de cet échange ont été développées par Belot et al. (1996). Par ailleurs, des expérimentations effectuées avec de l'eau lourde (HDO), utilisée comme traceur d'eau tritiée, ont été faites par Yokoyama et al. (2004). Elles ont montré que la vitesse d'échange moyenne sur une durée de 8 h était de l'ordre de 3×10^{-3} m/s et que l'essentiel de cet échange se produisait dans les 2 à 3 premiers centimètres du sol. Selon Nogushi et Yokoyama (2003), la hauteur de sol qui participe à cet échange est de 2,5 cm pour un sol cultivé et 7,5 cm pour un sol nu. La diminution de concentration dans cette couche est rapide, l'essentiel du processus s'achevant après les deux premières heures et la variabilité des vitesses d'échange est élevée, de l'ordre de 27 % environ, du même ordre que celles mesurées lors d'autres essais par Noguchi et al. (2001).

La vitesse initiale de dépôt de la vapeur d'eau tritiée est de l'ordre de 1 à 2×10^{-2} m/s, soit 10 à 100 fois plus élevée que celle de l'hydrogène tritié (Belot et al., 1996) ; cette vitesse peut cependant être plus faible selon les conditions locales, notamment en présence d'une couche sèche de sol ou de végétation qui accroît la résistance du sol à la pénétration de la vapeur. Ainsi, selon Belovodsky et al. (1997), la vitesse de dépôt sec de la vapeur d'eau tritiée serait de 4×10^{-4} à 4×10^{-3} m/s. Au fur et à mesure que s'équilibrent les concentrations en tritium de la vapeur d'eau atmosphérique et de la vapeur d'eau dans le sol, la vitesse apparente de dépôt diminue assez rapidement à partir de sa valeur initiale.

Beaucoup de modèles de calcul (voir chapitre 7) ne discriminent pas les différents phénomènes de dépôt du tritium et utilisent simplement une vitesse de dépôt globale. Cette vitesse est estimée à 5×10^{-3} m/s dans les calculs réalisés par le US-DOE pour les évaluations d'impact sur le site de Savannah River en Géorgie, USA (O'Kula and Thoman, 2007) avec le code ⁶UFOTRI ; Noguchi et al. (2001) utilisent par défaut une vitesse de dépôt de 2×10^{-2} m/s pour HTO dans le code ACUTRI.

6.1.3 Comportement des dépôts de tritium dans le sol

La majeure partie du tritium déposé dans le sol ne fait que transiter. Une grande partie de l'eau tritiée repart dans l'air par évaporation ; une autre partie est absorbée par les végétaux par voie racinaire et une faible part migre dans les horizons sous-jacents.

Réémission. Lors de la réémission de l'eau tritiée du sol vers l'atmosphère, les molécules d'eau tritiée sont indépendantes des molécules non tritiées et le transport des deux types de molécules dépend de leur distribution initiale dans le sol et dans l'atmosphère. En particulier, dans le cas où sa concentration est plus grande dans le sol que dans l'atmosphère, il est possible d'observer une évaporation significative de vapeur d'eau tritiée alors que l'évaporation de l'eau H_2O est faible ou nulle (équilibre des échanges sol↔atmosphère). Ce phénomène, lié à la dynamique du transport, n'est pas une discrimination isotopique (Belot et al., 1996). Le taux de réémission du tritium a été estimé dans divers cas (dépôt ponctuel ou prolongé, sol nu, sol végétalisé...). Après un apport de tritium dans le sol, la réémission est d'abord rapide puis diminue

fortement. Belot et al. (1996) indiquent des valeurs de l'ordre de 20 % par heure immédiatement après le dépôt, diminuant jusqu'à moins de 1 % par heure après quelques heures. Pour appliquer les modèles UFOTRI (accident) et NORMTRI (routine) à la région de Vandellós (Espagne), Velarde et al. (2006) ont retenu une vitesse de réémission du tritium de l'ordre de 0,5 % par heure pour un sol végétalisé et dix fois moins pour un sol nu. Au final, la fraction relâchée dans l'atmosphère est connue de façon très incertaine ; Velarde et Pelardo (2001) retiennent par défaut une fraction de 20 %. Le groupe de travail BIOMASS 3 (2003) a conclu, qu'en général, cette fraction ne dépasse pas 10 % et peut, sauf cas particulier, être négligée en tant que contribution secondaire du tritium présent dans l'atmosphère. Cette variable est donc encore mal quantifiée.

Comportement de l'eau tritiée (HTO) restant dans le sol. La fraction du tritium susceptible de rester sous forme d'eau tritiée dans le sol est supposée faible mais est mal connue.

Les travaux expérimentaux de Choi et al. (2007) montrent une évolution rapide du profil de concentration de tritium dans l'eau dans la couche de 0 à 30 cm d'un sol cultivé (chou chinois) après un dépôt unique d'eau tritiée en surface : 19 jours après la contamination du sol, le tritium retenu dans l'eau du sol présente un « pic » (10 % de l'activité apportée) entre 5 et 10 cm ; 56 jours après la contamination, le profil est quasiment homogène et le pourcentage retenu dans le sol est de l'ordre de 0,1 % de l'activité apportée. Les auteurs avaient déjà observé une évolution similaire lors d'expérimentations avec du riz (Choi et al., 2000).

⁶ Codes UFOTRI et ACUTRI, développés par le laboratoire national allemand KFK de Karlsruhe (e.g., Rashob and Barry, 1997).

La fraction d'eau tritiée qui s'infiltre dans le sol à partir d'un dépôt en surface est généralement mal connue, dans la mesure où elle dépend étroitement et à chaque instant de toutes les caractéristiques hydrauliques du sol et des conditions climatiques ; le groupe de travail BIOMASS 3 a aussi mis en évidence l'importance de l'état de la couverture végétale du sol, un sol végétalisé ayant tendance à augmenter le flux ascendant d'eau tritiée jusqu'à un facteur 3.

Comportement du tritium organiquement lié dans le sol. L'incorporation de tritium dans la matière organique du sol et les relâchements ultérieurs par réémission ne sont pas bien connus. Des essais in vitro ont mis en évidence une discrimination isotopique en faveur du tritium par rapport à l'hydrogène pour ce qui concerne l'incorporation dans les acides humiques et fulviques (facteur d'enrichissement de 1,3 à 1,7, selon Wierczinski *et al.*, 2005) ; les auteurs de ces essais présumant que le nombre élevé de liaisons hydrogènes dans ces composés y facilite l'échange tritium vs. hydrogène. Par ailleurs, des observations de Momoshima *et al.* (1999), au Japon, ont montré que la litière et l'humus de forêts de pins présentaient des rapports OBT/HTO allant de 1 à 6. Pour en déterminer la cause, des mesures périodiques de tritium libre et organiquement lié dans les aiguilles de pin récoltées, stérilisées ou non, puis placées in situ sur une litière forestière et soumises à une dégradation naturelle durant 100 jours ont été réalisées. Aucune variation significative des concentrations en OBT et HTO (comprises entre 1 et 2,5 Bq/L) mesurées n'a été observée. Les auteurs ont conclu que l'évolution de la concentration en tritium de la matière organique des humus par dégradation de la litière est un phénomène lent. En effet, si on considère que le tritium initialement lié à la matière organique est relâché en même temps que la minéralisation des molécules carbonées, on pourrait estimer que les périodes de rémanence du tritium organiquement lié seraient respectivement de l'ordre de 4 ans pour 12% du tritium, de 40 ans pour 63% du tritium et de 4 000 ans pour les 25 % restant (Balesdent and Recous, 1997), donc du même ordre de grandeur que la période radioactive du tritium où très supérieure à celle-ci. De façon générale, dans les sols cultivés en France, dont la teneur en humus est souvent faible (1 à 5%), cette forme de tritium est la plupart du temps négligeable. En revanche, dans les sols humifères (teneur en matière organique supérieure à 10 %) ou lorsque l'on se trouve dans une zone ayant reçu d'importants apports, la dégradation des molécules organiques peut constituer une source secondaire de tritium, qui reste néanmoins faible : Love *et al.* (2003) ont déduit de mesures réalisées à proximité du LBNL⁷ qu'une partie du tritium de l'eau dans le sol et de la végétation (arbres) proviendrait de la dégradation de l'humus forestier préalablement contaminé. Selon l'activité volumique du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique, cette contribution serait variable mais peu importante.

L'ensemble des données disponibles indiquent que le sol n'est pas un compartiment d'accumulation pour le tritium, contrairement à ce qui est observé pour la plupart des autres radionucléides.

6|1|4| Incorporation et devenir du tritium dans les végétaux terrestres

6|1|4|1| Rappels sur la physiologie du végétal

Le comportement du tritium dans les végétaux terrestres est déterminé principalement par :

- d'une part, le fonctionnement hydrique du végétal, qui conditionne l'absorption racinaire de l'eau ;
- d'autre part, la photosynthèse et les processus métaboliques (diurnes ou nocturnes) qui s'ensuivent, c'est la voie privilégiée d'incorporation du tritium sous forme organique dans le végétal. S'y ajoute également l'échange du protium organiquement lié échangeable contre du tritium de l'eau tissulaire et cellulaire (voir également § 2.2.2).

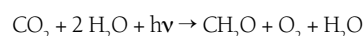
Fonctionnement hydrique du végétal. L'absorption de l'eau du sol par le végétal s'effectue par les racines, essentiellement par l'intermédiaire des poils absorbants et des zones apicales. La majeure partie de l'eau absorbée ne fait que transiter dans le végétal et s'échappe de la plante sous forme de vapeur d'eau dans l'atmosphère, par transpiration foliaire.

L'épiderme du végétal étant protégé par une cuticule, les échanges gazeux s'effectuent principalement par les pores des stomates. Les stomates sont présents sur les parties aériennes des végétaux (les feuilles, le plus souvent) où se fait l'essentiel de la photosynthèse, à raison de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de stomates par mm². L'air contenant du dioxyde de carbone (CO₂) entre par ces ouvertures pour être utilisé dans la photosynthèse ; la vapeur d'eau est relâchée dans l'atmosphère par ces pores. Durant la phase de transpiration des plantes, ce dégagement d'eau provoque une succion dans les éléments conducteurs de sève qui contribue à faire monter la sève brute.

Lorsqu'un déficit hydrique apparaît, le végétal ajuste, rapidement (et de façon réversible jusqu'à un certain seuil de sécheresse) les flux d'eau qui la traversent par la fermeture de ses stomates, grâce à l'action de l'acide abscissique (ABA). Cette phytohormone est synthétisée par les racines puis véhiculée jusqu'aux feuilles par la sève brute. La régulation hydrique diffère selon les espèces et le degré d'ouverture des stomates dépend de nombreux facteurs : rayonnement, température, humidité de l'air, état hydrique du végétal... Les quantités d'eau transitant par le végétal sont variables ; elles peuvent dépasser 100 litres par jour pour un arbre adulte.

Le potentiel hydrique (analogue d'une pression négative) représente l'énergie de la liaison de l'eau avec le milieu dans lequel elle se trouve, le potentiel de l'eau libre étant égal à zéro. L'eau se déplace dans le sens des potentiels décroissants. Le potentiel hydrique de l'air est presque toujours plus bas que celui du sol ; le potentiel hydrique dans les feuilles dépend de celui du sol et des résistances au transfert d'eau à travers la plante. On désigne par évapotranspiration (l/m².an) l'ensemble de l'eau perdue par la végétation (transpiration) et par le sol (évaporation). L'évapotranspiration potentielle (ETP) est déterminée par les conditions climatiques (rayonnement, température, humidité de l'air, vent...) et agronomiques (type de couverture végétale). L'évapotranspiration réelle (ETR) n'est égale à l'ETP que lorsque l'alimentation en eau n'est pas un facteur limitant ; la différence entre ETR et ETP constitue une mesure du déficit hydrique auquel est soumis le végétal in situ. L'évapotranspiration est en général maximale au printemps et moindre en été (sécheresse) ou en hiver (fonctionnement physiologique fortement ralenti). Elle varie également au cours d'une journée en fonction de la température extérieure et du métabolisme de la plante.

Photosynthèse. La photosynthèse permet aux végétaux chlorophylliens de transformer le dioxyde de carbone (CO₂) de l'atmosphère en glucides en utilisant l'énergie lumineuse. Elle aboutit à l'incorporation d'hydrogène au sein de la matière organique, comme l'indique l'équation de bilan schématisée suivante :



Elle comporte en fait deux suites de réactions, une phase photochimique (qui nécessite de la lumière) d'incorporation du CO₂ dans les stomates, au cours de laquelle l'énergie lumineuse est convertie en énergie chimique, et une phase non photochimique (ne nécessitant pas de lumière mais se déroulant néanmoins généralement durant le jour) au cours de laquelle l'énergie convertie permet la transformation du CO₂ en sucres (oses) par une suite de réactions appelée cycle de Calvin⁸.

Les molécules organiques issues de la photosynthèse subissent à leur tour des transformations via le métabolisme du végétal, pour constituer les composants nécessaires aux diverses fonctions physiologiques de la plante (croissance, respiration, reproduction...). Si du tritium venant de l'eau tritiée (HTO) est incorporé lors de la photosynthèse, il est susceptible de se retrouver dans diverses molécules organiques constituant la plante, en particulier dans des tissus de réserve où il peut persister en partie.

6|1|4|2| Le tritium dans les végétaux

Il est démontré depuis longtemps que seule l'eau tritiée HTO (eau ou vapeur) est susceptible d'être incorporée dans les végétaux autotrophes (Belot *et al.*, 1996, Boyer *et al.*, 2009) :

⁷ Lawrence Berkeley National Laboratory, Californie, USA possédant des installations qui ont rejeté du tritium, surtout durant les années 80 à 90.

⁸ Dans le cycle de Calvin - Benson - Bassham (cycle RPP) la première étape est la carboxylation du ribulose 1,5 biphosphate pour former le 3-phosphoglycérate. Cette réaction est catalysée par la ribulose 1,5-biphosphate carboxylase - oxygénase ou RuBisCO, qui est la protéine la plus abondante au monde et qui représente 50 % de l'ensemble des protéines des feuilles photosynthétiquement actives.

- par échange avec la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère, via les stomates des parties aériennes de la plante ;
- par le système racinaire, à partir de l'eau tritiée contenue dans le sol.

Échange foliaire. Les échanges gazeux avec l'atmosphère ambiante s'effectuent par les stomates des parties aériennes (feuilles) qui permettent l'entrée du CO₂ nécessaire à la photosynthèse et l'évacuation de la vapeur d'eau a) dégagée par la photosynthèse, b) provenant de la respiration de la plante, et c) transpirée. La transpiration est le principal moteur du flux d'eau absorbée par les racines du végétal et, à ce titre, constitue la voie majeure d'élimination du tritium libre de la plante. Les échanges sont très rapides : après une contamination ponctuelle de la plante, la teneur en eau tritiée de la biomasse aérienne diminue de plusieurs ordres de grandeur en quelques heures (e.g., Choi *et al.*, 2002 ; Keum *et al.*, 2006).

L'absorption de la vapeur d'eau tritiée de l'air ambiant s'effectue par un transfert avec diffusion dans les orifices stomatiques (Belot *et al.*, 1996). Il a été rapporté par Belot (Belot, 1979) que le flux correspondant est proportionnel à la différence des concentrations volumiques de la vapeur d'eau tritiée dans l'air et à la surface des feuilles (Murphy, 1993). La vitesse d'échange de l'eau tritiée (m/s) varie également selon les conditions d'ouverture (de jour) et de fermeture (de nuit ou en cas de déficit hydrique) des stomates. En termes de modélisation, ce dernier phénomène est assimilé à une résistance (s/m) dont l'inverse représente la vitesse d'incorporation foliaire.

A l'échelle du couvert végétal, cette résistance est classiquement considérée comme étant inversement proportionnelle à l'indice de surface foliaire. Les travaux de Melintescu et Galeriu (2005) leur ont permis de proposer une approche associant l'évaluation de ce paramètre à celle de l'intensité de la photosynthèse. Cette approche permet d'estimer l'incorporation de tritium par un nombre élevé de végétaux, à partir de paramètres agronomiques relativement bien connus, notamment le taux net de photosynthèse. Ces auteurs ont montré que leur modèle permet une bonne représentation de la résistance foliaire (Tab. 6.1). La vitesse d'échange serait en moyenne de 5×10^{-3} m/s.

Tableau 6.1 - Comparaison des résistances foliaires mesurées et modélisées (s/m).
Selon Melintescu et Galeriu (2005).

Végétal	Valeurs expérimentales (bibliographie)	Valeurs modélisées
Blé, stade végétatif	41-52	56
Blé, floraison	62-100	60
Maïs stade végétatif	121-131	111
Blé	17-20	18
Pomme de terre	100-130	130
Alfalfa (variété de luzerne)	100-120	110-130
Soja	66	70
Herbe (C3)	74	74-120
Herbe (C4)	11	156-178

Lorsque les plantes absorbent de la vapeur d'eau tritiée par voie foliaire, l'activité du tritium de l'eau dans les feuilles reste toujours inférieure à celle du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique, même quand les expositions sont suffisamment longues pour arriver à un état d'équilibre dynamique, en raison de la dilution de l'eau des feuilles par l'eau qui provient du sol et qui est non contaminée ou, a minima, moins contaminée que l'air (Belot *et al.*, 1996). Inversement, l'eau tritiée en

provenance du sol absorbée par voie racinaire peut être échangée avec la vapeur d'eau non contaminée de l'atmosphère. Il s'agit là d'une dilution et non d'une discrimination isotopique. Ces facteurs de dilution sont parfois distingués dans les modélisations mais, la plupart du temps, les auteurs n'indiquent que les valeurs de l'activité volumique du tritium dans l'eau du végétal rapportées à celles du tritium de l'atmosphère (Tab. 6.2) ; ce tableau provient des travaux de Peterson et Davis (2002) qui suggèrent d'appliquer un facteur de 0,9 pour les feuillages et de 0,8 pour les fruits, racines et grains.

Tableau 6.2 - Rapport de dilution de la concentration en HTO dans l'eau des végétaux à celle dans la vapeur d'eau atmosphérique. Selon Peterson et Davis (2002), résultats de mesures en zones affectées par des rejets chroniques.

Végétal	Valeur du rapport : HTO eau des végétaux / HTO vapeur d'eau atmosphérique
Feuilles	Divers végétaux : 0,49 — 0,77 ; feuilles de peuplier : 0,79 ; feuilles de tomates : 0,57 ; Feuilles maïs : 0,8 ; herbe 0,48 — 0,75
Fruits, racines	0,38 — 0,47
Céréales grain	0,66

Absorption racinaire. Une partie de l'eau absorbée par les racines est diluée dans le pool d'eau des liquides du végétal (cellulaires et extracellulaires) et son hydrogène est susceptible de s'échanger avec des atomes de tritium situés en position échangeable. Une partie s'incorpore à la matière organique via la photosynthèse. Cette incorporation est plus importante le jour que la nuit mais l'incorporation à l'obscurité n'est pas négligeable. Strack *et al.* (2005) ont mesuré que 20 % du tritium incorporé dans le blé l'était durant la nuit. Les expériences d'Atarashi-Ando *et al.* (2002) réalisées sur du riz avec de la vapeur d'eau enrichie en deutérium (D₂O) ont montré que la formation de matière organique marquée en deutérium est 2,4 à 2,9 fois plus forte pour une exposition de 8 heures durant le jour par rapport à une exposition de mêmes durée et intensité durant la nuit.

Répartition du tritium lié à la matière organique des végétaux.

L'incorporation du tritium sous forme non échangeable dans la matière organique du végétal se fait théoriquement avec un faible fractionnement isotopique (Boyer *et al.*, 2009 ; Belot, 1996). Ceci traduit le fait que le tritium (de masse atomique 3) est défavorisé par rapport à l'hydrogène dans les réactions enzymatiques.

On considère, qu'en moyenne, environ 70 % du tritium lié à la matière organique des végétaux se trouve sous forme non échangeable, le reste (30%) se mettant à l'équilibre avec l'eau tritiée à laquelle les molécules organiques sont exposées (Belot *et al.*, 1996). La valeur de cette fraction organique échangeable varie néanmoins selon les estimations de différents auteurs :

Pointurier *et al.* (2004) indiquent des valeurs bibliographiques allant de 11 % pour la cellulose à 22 % pour les pommes de terre et les raisins.

L'incorporation du tritium sous forme non échangeable dans la matière organique du végétal se fait théoriquement avec un fractionnement isotopique vrai. Ceci traduit le fait que le tritium (de masse atomique 3) est défavorisé par rapport à l'hydrogène dans les réactions enzymatiques.

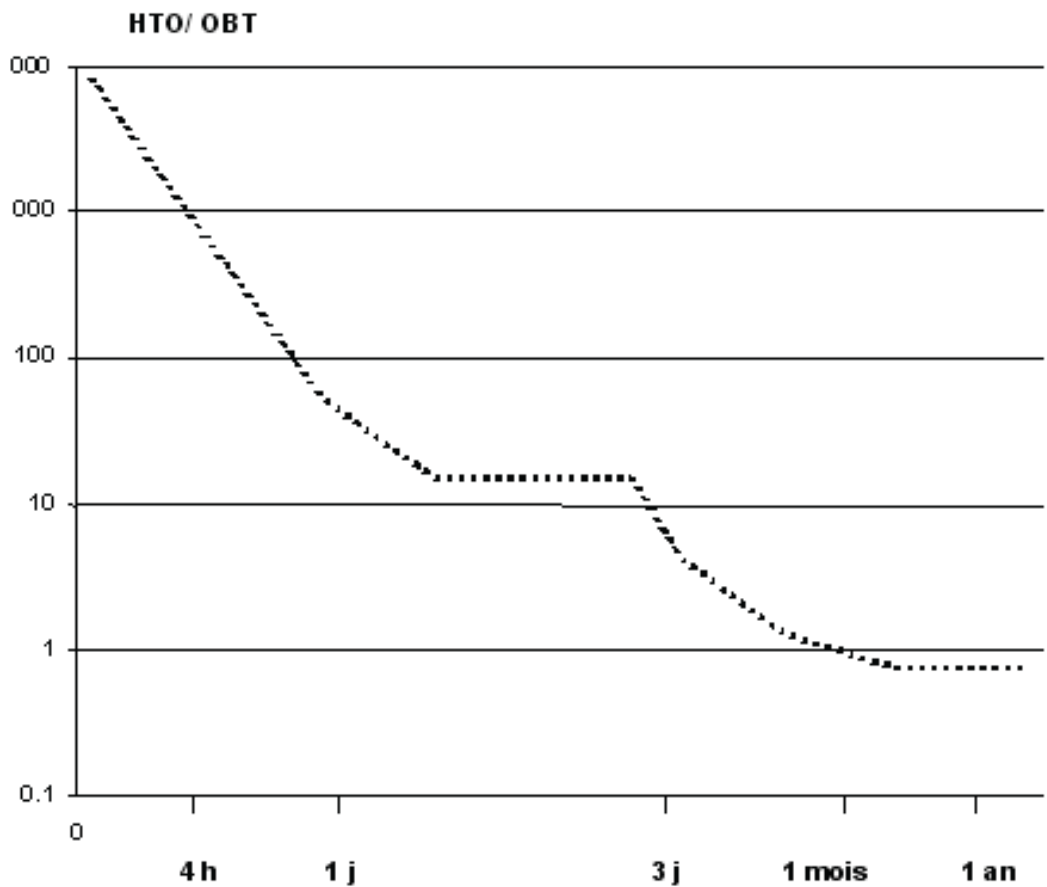
Rapport entre tritium lié et tritium libre. Les valeurs du rapport T/H, dans la matière organique relativement à l'eau libre, citées dans la bibliographie varient de 0,5 à 0,95 d'après la revue de Peterson et Davis (2002) qui suggèrent d'appliquer un facteur de 0,9 identique pour tous les végétaux (Tab. 6.3). Des valeurs supérieures à l'unité peuvent cependant être observées à partir de mesures in situ. Ainsi, les mesures du tritium organique non échangeable par rapport au tritium libre des végétaux effectuées par Jean-Baptiste *et al.* (2007) au voisinage de Creys-Malville ont montré des rapports OBT/HTO qui peuvent atteindre un facteur allant de 0,9 à 1,9, sans que les auteurs n'en proposent d'explication. Ces résultats sont indirectement corroborés par ceux de Pointurier *et al.* (2003 ; 2004) qui ont calculé des ratios de l'ordre de 1,6 à 2 entre le tritium lié dans des feuilles d'arbres (prélevées in situ, à proximité du centre CEA du CESTA, qui n'est pas supposé émettre de tritium) et les mesures du tritium dans les eaux de pluie. Les auteurs insistent sur les très nombreux biais liés aux prélèvements et aux mesures qui rendent délicate une interprétation de ces valeurs.

Dans le cas d'un rejet accidentel d'hydrogène tritié, la modélisation effectuée par Verlade et Pelardo (2001) permet d'estimer l'évolution en fonction du temps du rapport HTO/OBT dans divers végétaux (Fig. 6.5) : ce rapport, très élevé immédiatement après le rejet (1×10^4), diminuerait d'abord très vite (HTO/OBT = 10 après 3 jours) puis plus lentement, pour finalement se retrouver à des valeurs inférieures à l'unité (environ 0,8) après une année. Ceci signifierait une légère rémanence à long terme du tritium organiquement lié de la matière végétale, avec un rapport OBT/HTO d'environ 1,25.

Tableau 6.3 - Rapport de discrimination isotopique tritium/protium dans les végétaux à l'équilibre, selon Peterson et Davis (2002) : résultats d'expérimentations en milieu contrôlé ou de mesures en zones non affectées par des rejets (bruit de fond).

Végétal	Valeur du rapport : T/H de la matière organique / T/H de l'eau libre
Grains de céréales	riz : 0,6 — 0,8 ; blé : 0,5 — 0,8 ; maïs : 0,6 — 0,9
Herbacées	alfalfa : 0,78 ; orge : 0,68 — 0,73 ; maïs : 0,57 — 0,71 ; divers végétaux : 0,95

Figure 6.5 - Évolution calculée du rapport HTO/OBT de végétaux après exposition à un rejet ponctuel d'hydrogène tritié (HT) (Verlade et Pelardo, 2001).



Les essais réalisés par les équipes de Karlsruhe (Strack *et al.*, 2005) montrent qu'après une exposition ponctuelle de céréales à une atmosphère tritiée, le rapport OBT dans les grains récoltés/ HTO dans les feuilles varie de 0,02 à 0,9 %, le maximum correspondant au cas d'exposition de la culture durant le stade de remplissage des grains (Tab. 6.4).

Tableau 6.4 - Répartition du tritium entre les formes OBT et HTO en % dans les grains de blé à la récolte selon la période d'exposition de la culture (Strack *et al.*, 2005).

Période d'exposition de la culture	OBT du grain récolté / HTO des feuilles en fin de culture en %
avant le stade remplissage des grains	0,06 - 0,2
durant le stade remplissage des grains	0,4 - 0,9
après le stade remplissage des grains	0,04 - 0,02

Les expériences menées par les équipes coréennes de KAERI (e.g., Choi, Keum...) exposées dans Keum *et al.* (2006) permettent de modéliser l'évolution du tritium sous les formes HTO et OBT dans différents végétaux (riz, haricot, chou, radis) après une exposition par pulvérisation de HTO sous forme de vapeur dans une chambre de culture, de courte durée, à divers stades végétatifs et dans différentes conditions. Par exemple, dans le cas du riz, les résultats de ces expériences permettent de constater la très rapide décroissance de l'activité de HTO, couplée à une augmentation plus ou moins lente de l'activité d'OBT, qui reste ensuite constante dans les épis : 40 jours après l'exposition, le rapport OBT/HTO dans les épis est d'environ 100, du fait de la rémanence du tritium organiquement lié formé par photosynthèse à la suite de l'exposition à la vapeur tritiée.

Pour de tels essais de contamination ponctuelle, la difficulté pour comparer les valeurs provient de la très grande disparité des conditions expérimentales d'une part, de la façon d'exprimer les résultats d'autre part ; ainsi les auteurs considèrent le rapport OBT/HTO d'une partie du végétal ou d'une partie par rapport à une autre ; les résultats sont exprimés soit en Bq/L d'eau de végétal par Bq/L de vapeur d'eau, soit en Bq/kg sec de végétal par Bq/L de vapeur d'eau, soit sous la forme de facteurs de transfert.

La tendance commune observable est, dans tous les cas, l'existence d'une phase immédiate de contamination des tissus par HTO, suivie d'une phase très rapide (quelques heures) de diminution du tritium libre de la plante, tandis que se produit l'incorporation du tritium dans la matière organique, à des niveaux cependant faibles. Par exemple, les facteurs de transfert (Bq/kg frais par Bq/m²) au chou après un dépôt de HTO liquide sur le sol sont de l'ordre de 5×10^{-5} à 5×10^{-6} pour le tritium sous forme OBT et de 2×10^{-5} à 5×10^{-3} pour le tritium sous forme HTO (Choi *et al.*, 2007). Pour le radis contaminé par voie atmosphérique, le rapport du tritium OBT des végétaux au tritium HTO de la vapeur d'eau contaminante (Bq/kg sec par Bq/L de vapeur) est de l'ordre de 10^{-3} pour les feuilles et de 10^{-4} pour les racines récoltées.

Cas des arbres. Le cas des arbres est particulier puisqu'une partie de leurs réserves organiques persiste pendant des dizaines d'années ; cette particularité a donné lieu à divers travaux in situ, notamment en France au voisinage des sites de Marcoule (Descamps *et al.*, 1995 a-b) et de Valduc (Vray and Salaun, 2003) ainsi qu'en Allemagne (Starck *et al.*, 2005) et aux États Unis (Love *et al.*, 2003). Ces études visaient à mettre en relation les variations des rejets d'une installation avec les niveaux observés, soit en fonction de la répartition spatiale (distance et position par rapport aux rejets), soit en fonction du temps, par l'étude des cernes d'arbres et la reconstitution des apports passés.

Les travaux sur les cernes d'arbre de Love *et al.* (2003) ont mis en évidence que les cernes d'eucalyptus retracent bien l'historique des rejets de tritium du LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory). Durant les années où ont eu lieu de forts rejets, jusqu'à 20 000 UT dans la vapeur d'eau, le rapport de l'activité volumique⁹ du tritium

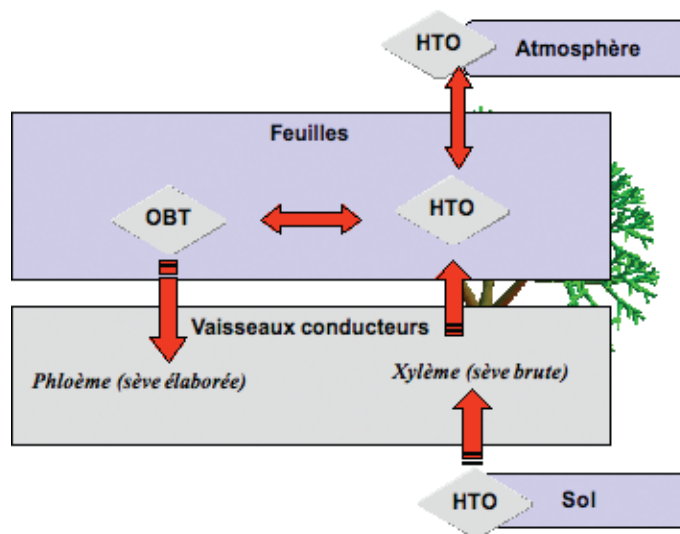
organiquement lié mesurée dans le bois et de l'activité volumique du tritium sous forme de vapeur d'eau de l'atmosphère était en moyenne compris entre 1 et 3. Les données acquises

et modélisées par Vray et Salaun (2003) montrent également une valeur du rapport OBT (feuilles) / HTO (vapeur d'eau) en moyenne égale à 1,5 pour les feuilles de chêne prélevées sous influence directe des rejets du

centre CEA de Valduc ; en revanche, les données recueillies par Descamps *et al.* (1995-b) près de Marcoule aboutissent à un rapport de l'ordre de 0,7. La grande variabilité du comportement du tritium, selon le rythme et les conditions des rejets et l'état des végétaux, est un élément d'explication à ces résultats contradictoires.

Cependant, compte tenu du comportement général du tritium dans les arbres (Fig. 6.6), on peut considérer que le tritium est susceptible d'être stocké sous forme organique dans les organes persistants (racines et bois) et éventuellement de contribuer ensuite à une augmentation du tritium sous forme HTO dans le végétal (feuilles) voire du milieu ambiant (chute des feuilles et enrichissement de la litière puis humification ; voir § 5.1.3 et § 6.1.3).

Figure 6.6 - Modélisation simplifiée des transferts de tritium dans les arbres (Strack *et al.*, 2005).



Tissus conducteurs : le xylème conduit la sève brute (eau, sels minéraux), le phloème la sève élaborée (eau, sels minéraux et substances organiques synthétisées par la plante).

L'ensemble des mécanismes évoqués ci-dessus vont, en général, dans le sens de l'hypothèse habituellement retenue d'un équilibre isotopique (de durée plus ou moins longue) entre les organismes et les milieux dans lesquels ils se trouvent : lorsque l'activité du tritium ambiant ne varie pas, le tritium dans le végétal est à l'équilibre isotopique et l'activité volumique du tritium organiquement lié (OBT) est à peu près équivalente à celle du tritium libre (HTO) (OBT/HTO $\approx$ 0,9). Lorsque le végétal a été exposé temporairement à une activité volumique de tritium plus élevée, la matière organique formée durant cette exposition incorpore du tritium qui subsiste dans le végétal sous forme OBT, alors que l'activité volumique du tritium sous forme HTO décroît très rapidement pour retrouver un équilibre avec la vapeur d'eau ambiante.

⁹ Dans ce paragraphe, le terme concentration s'entend en Bq/L d'eau extraite (combustion ou distillation, selon la fraction, OBT ou HTO, de tritium mesurée).

Les mécanismes d'intégration du tritium à la manière organique des végétaux ne conduisent pas à démontrer un phénomène de bioaccumulation au sens défini au paragraphe 2.2.3, mais peuvent conduire à une rémanence du tritium dans certains compartiments (par exemple, les bois d'arbres), pour des durées plus ou moins longues. En l'occurrence, les processus d'incorporation et de relâchement du tritium dans les végétaux apparaissent éminemment variables et, pour certains d'entre eux, sont encore, sinon méconnus, du moins mal quantifiés ; ils dépendent fortement :

- du niveau, de la durée, de la saison (et même de la condition jour-nuit) de la contamination du milieu ambiant ;
- des paramètres agro-climatiques : saison, humidité de l'air et du sol, présence-absence de pluie et caractéristique des précipitations ;
- des types et des stades végétatifs des plantes.

Ces conclusions sur l'absence probable de bioaccumulation du tritium tirées de l'étude, encore imparfaite, des mécanismes d'incorporation et d'échange du tritium dans les végétaux terrestres, rejoignent celles déduites des résultats d'observation dans l'environnement (cf. § 5.1.3) qui tendent à montrer que les niveaux de tritium organiquement lié dans les végétaux décroissent plus vite que la période radioactive du tritium et que les activités de tritium des végétaux (exprimées en Bq/L) sont dans la gamme des valeurs observées dans les eaux de pluie.

6.1.5 Incorporation et devenir du tritium dans les animaux de cheptel

Les publications relatives à l'incorporation et au devenir du tritium dans les animaux de cheptel sont rares, si l'on excepte celles relatives à la modélisation du comportement du tritium dans les animaux en vue d'estimer les activités volumiques ou massiques dans les productions (laits, viandes...) qui reflètent notamment les travaux réalisés dans le cadre de collaborations internationales¹⁰ (Galeriu *et al.*, 2001 ; 2005 ; 2007 ; 2009).

Deux processus permettent l'incorporation de tritium dans les animaux : l'ingestion — affouragement et abreuvement — et l'absorption de vapeur d'eau par inhalation et passage à travers la peau (Belot *et al.*, 1996).

Absorption du tritium.

L'absorption de tritium par inhalation de vapeur d'eau tritiée est rapide et quasi totale, 99 % du tritium inhalé sous cette forme étant retenu dans le corps de l'animal au bout de quelques secondes. Dans celui-ci, l'eau tritiée diffuse librement et rapidement à travers toutes les membranes cellulaires et s'équilibre avec les fluides corporels en quelques minutes (Belot *et al.*, 1996). L'inhalation de dihydrogène tritié HT (très peu soluble, mais susceptible d'être faiblement oxydé en HTO) ne conduit qu'à très peu d'incorporation : il a été estimé que son « efficacité » en termes de rétention serait 1 500 fois moindre que celle de l'eau tritiée.

L'absorption transcutanée est à peu près égale à l'absorption par inhalation. L'absorption

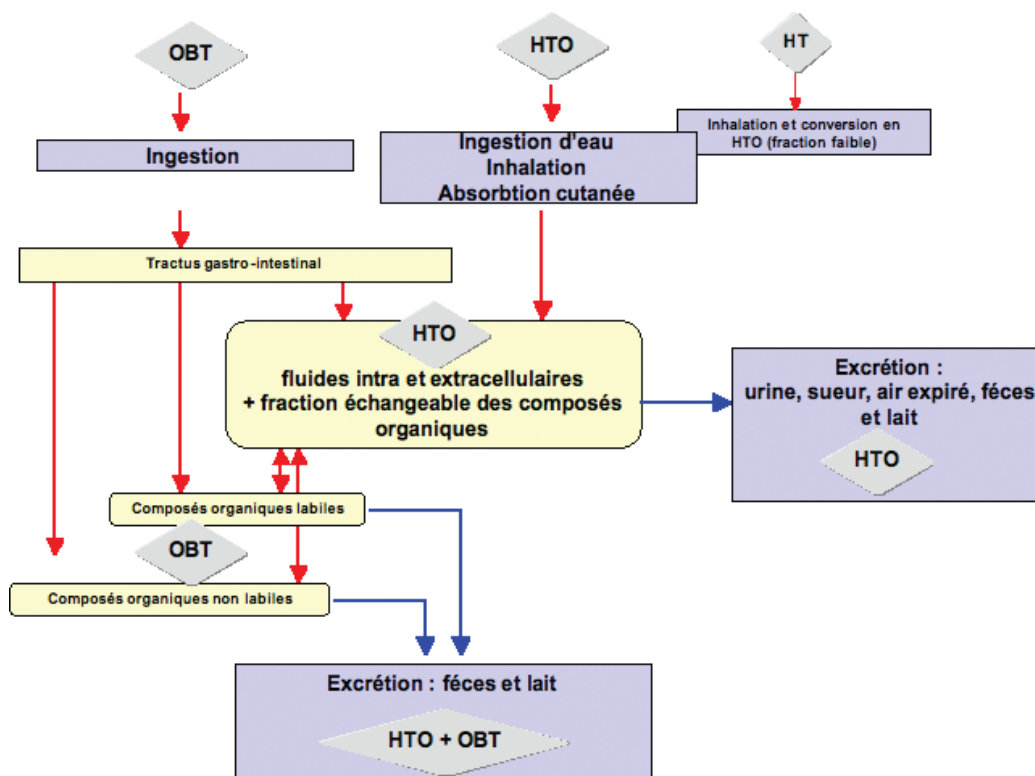
d'eau tritiée se fait également par ingestion d'eau de boisson tritiée ou par ingestion d'aliments tritiés. L'eau tritiée ainsi ingérée apparaît en quelques minutes dans le sang veineux, ainsi que dans les divers organes, fluides et tissus du corps.

Une très faible fraction du tritium absorbé sous forme d'eau tritiée peut être incorporée dans les molécules organiques de l'organisme sous forme de tritium organique OBT non échangeable (Belot *et al.*, 1996), à l'occasion de réactions de biosynthèse. Du tritium peut être aussi absorbé sous forme de molécules organiques tritiées présentes dans la nourriture (lipides, glucides, protéines, acides aminés...) qui ont un comportement métabolique tout à fait différent de celui du tritium de l'eau tritiée. Le tritium organiquement lié ingéré n'est pas entièrement oxydé dans le corps à l'état d'eau tritiée. Les aliments tritiés sont transformés dans le processus digestif en molécules organiques plus petites. Ces dernières entrent dans la circulation sanguine qui les transporte au sein des cellules où elles sont métabolisées. Seule une partie du tritium organique est transformée dans le corps en eau tritiée au cours du catabolisme des aliments pour se mélanger ensuite à l'eau corporelle ; le reste est intégré à de nouvelles molécules organiques (biosynthèse) plus ou moins pérennes dans l'organisme. En conséquence, le taux d'incorporation de tritium dans la fraction organique du corps sera plus grand après ingestion de tritium organique qu'après ingestion d'eau tritiée (Belot *et al.*, 1996).

Élimination du tritium. Le tritium est généralement éliminé du corps des animaux sous la forme d'eau tritiée : urine, fèces, vapeur d'eau exhalée et transpiration. La relation entre le volume d'eau dans l'animal et la perte d'eau journalière est le facteur déterminant du temps de renouvellement du tritium dans le corps lorsque l'animal a été contaminé. La courbe d'élimination urinaire du tritium montre plusieurs phases : habituellement, 97 % du tritium est éliminé avec une demi-vie de quelques jours ; le reste du tritium, correspondant à la fraction organiquement liée dans l'organisme, est éliminé avec des demi-vies plus longues de quelques dizaines à quelques centaines de jours, selon le métabolisme des molécules organiques tritiées (Belot *et al.*, 1996).

La figure 6.7 (Thorne, 2003) schématise les connaissances actuelles relatives aux voies d'incorporation des formes du tritium dans les animaux.

Figure 6.7 - Transferts de tritium aux produits d'origine animale, d'après Thorne, 2003.

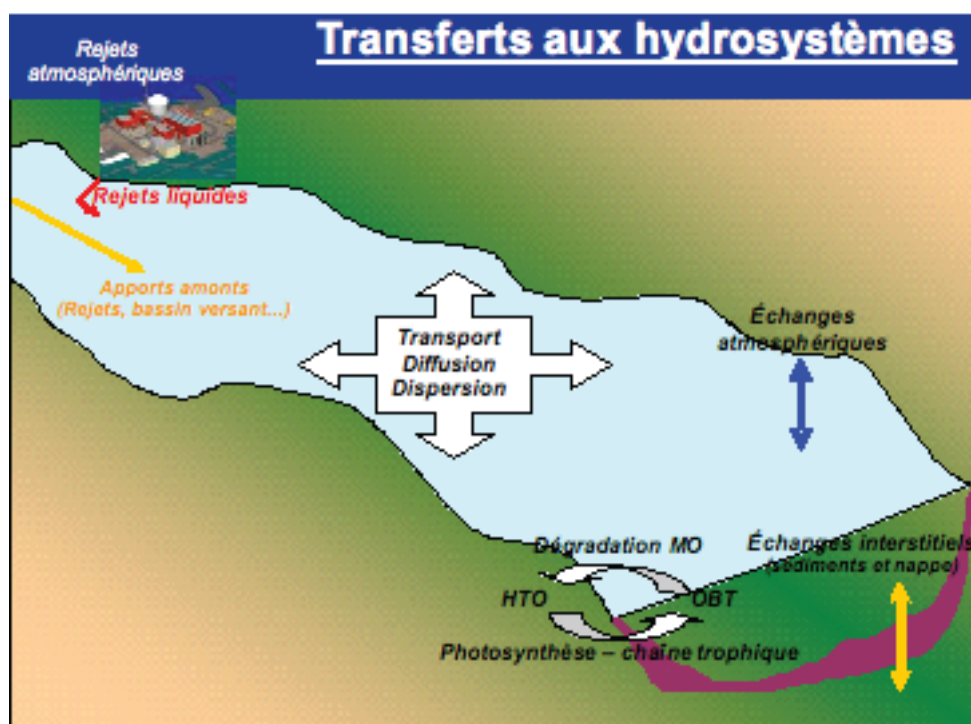


¹⁰ Laboratoires de Roumanie, Royaume Uni, U.S.A. et Belgique.

6|2|1| Transferts dans les hydrosystèmes continentaux

A l'échelle mondiale, les estimations de l'activité volumique naturelle de tritium dans les eaux de surface sont comprises entre 0,1 et 0,9 Bq.L⁻¹ (UNSCEAR, 1993). Pour la France, les résultats de mesures concernant l'ensemble des fleuves français montrent la plupart du temps des valeurs inférieures à la limite de détection (9 à 10 Bq.L⁻¹). Sur le Rhône, les concentrations varient de 2 à 15 Bq.L⁻¹ (Antonelli et Eyrolle, 2010). Des valeurs comprises entre 10 et 80 Bq.L⁻¹ ont été observées sur la Loire (Goutal *et al.*, 2008). On notera des observations effectuées sur le Doubs et la Seine qui font respectivement état de concentrations de 280 et de 190 Bq.L⁻¹ (Antonelli, 2008). Le tritium est essentiellement présent dans les hydrosystèmes sous sa forme HTO ($\approx 99\%$) ; sous cette forme, son comportement suit principalement celui des flux hydriques (Fig. 6.8).

Figure 6.8 - Principaux mécanismes de dispersion et de transfert du tritium sous forme libre au sein des hydrosystèmes.



Les transferts font intervenir les rejets directs d'effluents liquides émis par les activités nucléaires (industrie, centres de recherche...), des mécanismes de transport, de diffusion et de dispersion, les apports du bassin versant et les échanges aux interfaces atmosphériques et sédimentaires (sédiments et nappe). De plus, à partir de sa forme HTO, le tritium peut être incorporé à la matière organique via la photosynthèse et transféré par la nourriture au sein des réseaux trophiques.

Les interfaces entre les hydrosystèmes de surface et l'atmosphère sont le siège d'échanges hydriques qui impliquent des processus naturels de changement de phase (évaporation, condensation, cristallisation) et de précipitations (pluies). En présence d'eau tritiée, ces processus induisent des transferts de tritium qui dépendent plus des différences de concentrations de tritium dans les deux milieux (air et eau) que des échanges d'eau. La légère différence de masse entre les atomes d'hydrogène et les atomes de tritium explique l'existence d'un faible enrichissement de la phase condensée en tritium par rapport à l'hydrogène (plus léger) ; c'est le processus de discrimination isotopique.

Les échanges interstitiels regroupent les flux entre la colonne d'eau et l'eau interstitielle des sédiments. Le tritium n'ayant qu'une faible affinité pour les particules solides, ces échanges sont peu concernés par les

mécanismes de dépôt des matières en suspension ; ils dépendent essentiellement des flux hydriques à l'interface de ces deux milieux.

6|2|2| Comportement du tritium dans les organismes aquatiques

Les connaissances relatives au comportement du tritium dans les organismes aquatiques sont très restreintes. Par ailleurs, il n'y a pas nécessairement lieu de distinguer ces organismes des organismes terrestres, tous partageant un certain nombre de processus physiologiques communs. Il est à noter qu'il y a très peu d'études récentes dédiées au comportement du tritium dans les organismes dulçaquicoles.

6|2|2|1| Influence des formes chimiques du tritium dans l'eau

Le tritium sous forme d'eau tritiée (HTO) est très facilement transféré aux producteurs primaires. Le transfert de tritium aux niveaux trophiques supérieurs se fait d'une part directement via HTO, d'autre part par la voie trophique. Le pool de tritium échangeable des molécules organiques tend à s'équilibrer très rapidement avec l'environnement, en quelques heures. A l'opposé, le pool non échangeable porte la signature isotopique caractéristique de l'instant de formation de la molécule organique, conduisant à la rémanence de la contamination en tritium de l'organisme, pendant une durée plus ou moins longue.

En conséquence, le facteur de concentration usuel du tritium libre est de l'ordre de l'unité, celui de l'OBT est d'environ 0,5 pour la voie directe (contamination à partir de HTO ; Blaylock *et al.*, 1986). Les organismes exposés par la voie trophique accumuleraient le tritium organiquement lié plus rapidement et avec des activités massiques plus

élevées que les organismes simplement exposés par voie directe à l'eau tritiée (Blaylock *et al.*, 1986). Par ailleurs, le tritium organiquement lié se comporterait différemment de l'eau tritiée, son comportement dépendant en premier lieu de la nature de la molécule organique marquée par le tritium (cf. § 5.2.2).

6|2|2|2| Comportement dans les végétaux aquatiques

Les algues sont vraisemblablement les organismes pour lesquels il existe le plus grand nombre d'études relatives au tritium, la plupart portant sur les algues marines. Un certain nombre d'études ont cependant concerné des algues dulçaquicoles.

Pour l'essentiel, trois types d'études peuvent être trouvés dans la littérature (Blaylock *et al.*, 1986) ; elles concernent :

- l'incorporation et l'élimination de tritium dans des algues exposées à HTO ;
- l'incorporation et l'élimination du tritium organique (OBT) dans des algues exposées à HTO ;
- l'incorporation de précurseurs tritiés (acides aminés et glucides) dans la matière organique des algues.

Le tritium présent dans l'eau libre des cellules algales se met en équilibre en quelques minutes avec l'eau tritiée environnante. L'incorporation de tritium dans la matière organique résulterait principalement de la photosynthèse, selon l'équation simplifiée $\text{HTO} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CHTO} + \text{O}_2$. Les algues sont également capables d'utiliser certains composés organiques (Blaylock et al, 1986 ; Diabaté and Strack, 1993), le devenir du tritium organiquement lié étant alors très dépendant de la nature de la molécule marquée : des facteurs de concentration de 1 à 100 ont été déterminés pour le milieu marin selon le composé organique tritié incorporé (e.g. uridine : 2 ; leucine : 10 ; adénine : 100, Strack et al, 1980).

In situ, les activités massiques de tritium libre dans les plantes immergées (mousses et myriophylles), en équilibre avec l'activité de l'eau du Rhône (Jean-Baptiste et al, 2007), sont inférieures de 1 à 2 ordres de grandeurs aux concentrations massiques en OBT non échangeable, ces dernières étant possiblement liées au tritium émis antérieurement par l'industrie horlogère et piégé notamment dans les sédiments. Toutefois, des investigations complémentaires sont en cours pour caractériser les formes de tritium impliquées et leur origine (Jean-Baptiste et al, 2007). Les quelques rares données expérimentales relatives aux plantes supérieures semblent montrer que, pour des végétaux semi-aquatiques, l'activité massique de tritium libre dans la plante ne s'équilibre pas avec celle du tritium dans l'eau (Harrison and Korranda, 1971), l'hypothèse la plus probable quant à l'origine de ce phénomène étant l'existence d'échanges entre le feuillage émergé des plantes et l'eau atmosphérique (humidité de l'air).

6|2|2|3| Comportement dans les animaux aquatiques

Deux voies de contamination interviennent en parallèle pour les animaux aquatiques : les transferts directs de tritium à partir de l'eau et les transferts trophiques.

Transferts directs. Les échanges eau↔animal en milieu aquatique résultent du processus physiologique de respiration/osmorégulation, qui conduit, par la régulation du bilan hydrique de l'animal, à une mise en équilibre rapide entre l'eau tritiée environnante et l'eau des tissus (Calmon and Garnier-Laplace, 2001). Les délais d'atteinte de l'équilibre entre l'eau tritiée et les poissons sont globalement très courts, avec des facteurs de concentration compris entre 0,6 et 1 (exprimés sur la base du poids frais), et des périodes biologiques inférieures à un jour (Elwood, 1971).

Lors d'études en mésocosmes (eau douce), il a été montré que l'activité massique de tritium libre dans les organismes atteint rapidement 95 % de l'activité massique dans le milieu d'exposition, et reste à ce niveau (Harrison and Korranda, 1971), avec des activités massiques de tritium organique lié plus élevées pour les organismes photosynthétiques que pour les animaux.

Concernant le tritium lié, sa demi-vie dans les organismes animaux serait plutôt de l'ordre de la dizaine de jours : pour des juvéniles de truite arc-en-ciel, le rapport $\text{OBT}_{\text{truite}}/\text{HTO}_{\text{eau}}$ s'équilibre rapidement aux environs de 0,2 à la suite d'une contamination chronique par voie directe, avec une période biologique de 10 jours (Rodgers, 1986). Dans le Rhône, aux alentours de Creys-Malville, les activités massiques de tritium libre des poissons sont en équilibre avec les activités volumiques de tritium dans l'eau du fleuve (Jean-Baptiste et al, 2007), alors que les activités massiques de tritium organiquement lié non échangeable sont supérieures d'un facteur 2 à 20, selon les années. Des facteurs de concentration du tritium lié supérieurs à 1 avaient déjà été rapportés pour les poissons des fleuves français (en Bq.L^{-1} d'eau de combustion par Bq.L^{-1} d'eau du fleuve, 8 ± 2 , 3 ± 1 et 15 ± 3 pour le Rhône, 6 ± 1 pour les fleuves exempts d'installations nucléaires ; Pally et al, 1993), assortis de l'hypothèse d'une contamination prépondérante par ingestion de matière organique tritiée. Cette hypothèse est cohérente avec les résultats obtenus précédemment, d'une part *in situ* (Kirchman et al, 1979), d'autre part *in vitro*. En effet, il avait été montré que l'incorporation de tritium dans les poissons atteint un maximum quand l'eau et la nourriture sont tritiées (Rodgers, 1986). Le même processus d'incorporation

de molécules organiques marquées au tritium a également été mis en avant pour expliquer les facteurs de concentration très élevés observés dans divers poissons de la baie de Cardiff et de l'estuaire de la Severn (UK, cf. § 5.2.3).

Transfert trophique. Lors de l'alimentation, toutes les formes de tritium associées aux substrats nutritifs sont assimilées par le consommateur. Le métabolisme du tritium organiquement lié consommé par l'animal conduit en grande partie à la production d'eau tritiée, selon une cinétique dépendant de la nature de la molécule organique tritiée. La plupart des auteurs s'accordent à considérer que le taux d'incorporation de tritium organique est supérieur par la voie trophique comparativement à la voie directe. Ainsi, l'étude du transfert trophique du tritium dans les invertébrés benthiques d'eau douce a montré que la demi-vie biologique de cet isotope serait liée à la nature de la phase porteuse du tritium lors de la contamination de la nourriture : la demi-vie chez les invertébrés serait plus longue lorsque la nourriture (algues) est contaminée à partir d'une molécule organique tritiée (Blaylock et al, 1986). Tous les processus physiologiques ayant des répercussions sur le métabolisme hydrominéral, comme par exemple la reproduction, sont également susceptibles de modifier la période biologique du tritium lié. Ainsi, Yankovich *et al.* (2006), d'après les résultats de mesures *in situ*, ont émis l'hypothèse que le tritium organiquement lié pourrait être incorporé dans les cellules reproductrices de moules (*Elliptio complanata*) matures, et être éliminé de l'organisme lors de la fraie. Pour la truite arc-en-ciel, les périodes biologiques du tritium organique provenant de la voie trophique, qui représente à l'équilibre 80 % du tritium ingéré, varient de 18 à 32 jours (Rodgers, 1986).

6|2|3| Transfert du tritium entre l'eau et l'atmosphère

En fonction de leurs formes chimiques, les radionucléides artificiels rejetés dans la mer par les installations nucléaires peuvent être transférés à la terre par les aérosols marins mais aussi par le dégazage ou l'évaporation d'eau de mer (respectivement pour le carbone-14 et le tritium). Cette voie de transfert a été étudiée par l'IRSN afin d'estimer la contamination des sols et des végétaux puis de l'espèce humaine par des radionucléides présents dans l'eau de mer. En particulier, l'IRSN a quantifié les flux de tritium sous forme gazeuse, de la mer à l'atmosphère entre le point de rejet en milieu marin de l'usine de traitement des combustibles nucléaires usés de La Hague et l'estuaire de la Seine (Maro *et al.*, 2004).

En 2000 et 2002, trois campagnes océanographiques ont été réalisées par l'IRSN avec le navire océanographique du CNRS «Côtes de la Manche» du 1er au 4 juin 2000 (TE_SEA), puis du 24 au 28 février 2002 (TRANSAT 1) et du 27 au 31 août 2002 (TRANSAT 2).

Les flux de tritium de l'eau à l'atmosphère dus aux rejets en milieu marin de l'usine de La Hague ont été estimés respectivement à $4,0.10^7 \text{ Bq.km}^{-2}.\text{j}^{-1}$ (TE-SEA), $2,0.10^7 \text{ Bq.km}^{-2}.\text{j}^{-1}$ (TRANSAT 1) et $1,3.10^7 \text{ Bq.km}^{-2}.\text{j}^{-1}$ (TRANSAT 2). Les flux de tritium de l'eau à l'atmosphère diminuent lorsque l'on s'éloigne du point de rejet, en raison de la dilution des rejets liquides dans La Manche. Le flux moyen calculé pour l'ensemble de ces campagnes est de $2,4.10^7 \text{ Bq.km}^{-2}.\text{j}^{-1}$ pour la surface correspondant à la baie de Seine (4400 km^2), la quantité de tritium transférée dans l'atmosphère en 2002 peut être évaluée à 39 TBq, soit 0,3 % de la quantité de tritium rejeté en mer en 2002 par l'usine de La Hague (Maro *et al.*, 2005).

Une étude des transferts de tritium entre l'eau et l'atmosphère, dénommée LORA, a été réalisée par l'IRSN sur la Loire entre septembre 2004 et novembre 2005 pour le compte d'EDF en collaboration avec Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE, CEA/CNRS), le Groupe d'Études Atomiques (GEA, Marine Nationale) et le Département Géologie et Océanographie (DGO) de l'Université de Bordeaux. Ce travail (Fontugne *et al.*, 2007) a mis en évidence une augmentation de l'activité de tritium contenue dans la vapeur d'eau de l'air prélevé à 1,5 m au-dessus des berges lors d'un rejet du CNPE de Belleville-sur-Loire conduisant à une augmentation de l'activité dans le fleuve. Ces résultats confirment qu'il existe un transfert de tritium de l'eau à l'atmosphère par évaporation ou par diffusion, dont il convient de tenir compte dans les modèles de transfert du tritium.

6|3| Synthèse des connaissances sur le comportement du tritium dans les écosystèmes

Le tritium est extrêmement mobile et il est susceptible de s'échanger plus ou moins rapidement avec l'hydrogène. Il suit le cycle de l'eau et il peut s'incorporer à l'eau de constitution des cellules ainsi qu'à la matière organique de tous les organismes vivants. Sa très grande mobilité est une source importante de difficultés et d'incertitudes pour la préparation d'échantillons pour la mesure de ce radionucléide. L'absence de définition consensuelle « normalisée » des fractions tritium organique strictement non échangeable, tritium organique échangeable et tritium libre conduit, d'une part à des incertitudes sur les proportions exactes de ces deux fractions, d'autre part à des difficultés pour comparer les résultats de mesures ou d'essais expérimentaux figurant dans diverses références bibliographiques. Il serait très utile qu'une définition unique de ces fractions, forcément associée à l'établissement de protocoles standards de préparation et de mesure du tritium dans les échantillons, soit élaborée par la communauté scientifique.

Dans l'atmosphère le tritium se trouve sous forme d'eau tritiée (HTO) (liquide ou vapeur d'eau), d'hydrogène tritié (HT) et de méthane tritié (CH_3T). La connaissance du comportement de l'hydrogène tritié a été améliorée et cette forme du tritium qui subit une oxydation microbienne dès qu'elle pénètre dans le sol, se comporte ensuite comme l'eau tritiée HTO en étant rapidement réémis dans l'atmosphère ou en migrant vers le sous-sol. L'évaluation du comportement de ces deux formes chimiques du tritium est correctement appréhendée, et probablement de façon majorante, en considérant que tout le tritium rejeté dans l'atmosphère se trouve sous la forme HTO, bien que les cinétiques d'évolution ne soient sans doute pas comparables. On ne connaît guère le devenir de la forme CH_3T et encore moins celui des éventuelles autres formes organiques. Si elles existent dans les rejets atmosphériques, celles-ci pourraient avoir un comportement plus pénalisant que celui de l'eau tritiée (comme c'est le cas pour les molécules organiques tritiées rejetées dans la baie de Cardiff) et il conviendrait de s'assurer qu'elles n'augmentent pas le transfert de tritium à la biomasse terrestre.

Le transfert du tritium aux végétaux terrestres est bien connu pour ce qui concerne les processus impliqués. Il s'effectue en totalité sous forme d'eau (vapeur ou liquide) tritiée. Le tritium s'échange avec l'hydrogène de la vapeur d'eau dans l'atmosphère par la biomasse aérienne et s'incorpore à l'eau du végétal par l'absorption racinaire. Les processus mis en jeu sont très rapides (quelques minutes à quelques heures). Une fraction du tritium se retrouve incorporée ou piégée dans la matière organique, lors de la photosynthèse, mais les valeurs des paramètres nécessaires à la prédiction précise des transferts restent rares et surtout éparpillées, en particulier pour des rejets ponctuels. La très grande variabilité du comportement du tritium en fonction de la durée d'exposition, des paramètres environnementaux (humidité de l'air, état hydrique du végétal, jour/nuit, durée du rejet...) font que chaque résultat d'essai ne donne que des valeurs de paramètres spécifiques aux conditions dans lesquelles a eu lieu l'expérimentation, difficilement généralisables.

L'ensemble des études et observations sur le comportement du tritium ne conduit pas à mettre en évidence de bioaccumulation significative dans les végétaux terrestres, au sens défini au paragraphe 2.2.3. En revanche, une rémanence du tritium organique est parfois observée dans des végétaux antérieurement exposés à une contamination ambiante prolongée ou importante ; toutefois cette rémanence peut ou non se manifester selon le contexte de l'exposition (conditions agro-climatiques locales, durée et intensité de l'exposition). L'exposition temporaire d'un végétal non pérenne (e.g., culture annuelle) à un niveau ambiant de tritium plus élevé que le bruit de fond se traduit par une élévation très fugace de la concentration en eau tritié dans la plante. Conjointement et durant les quelques heures à quelques jours suivants, se produit une élévation bien moins importante de l'activité du tritium organique formé par photosynthèse. Cette fraction, variable suivant les conditions de l'exposition, est distribuée dans les parties du végétal selon le stade végétatif lors de l'exposition, reste incorporée jusqu'à la récolte (ou jusqu'au prélèvement). Pour le cas particulier où il existe une rémanence du

tritium dans des parties persistantes des végétaux pérennes, en particulier les bois d'arbres (et peut-être aussi, les mats de prairie, les parties végétatives des arbustes...), il est possible qu'une partie de ce tritium soit redistribué vers l'ensemble du végétal, ce qui peut conduire à retrouver ultérieurement un niveau de tritium organique dans les échantillons végétaux supérieur au niveau de tritium libre (HTO) dans le végétal ou dans l'atmosphère au moment du prélèvement. En termes de transfert à l'homme, ce cas particulier, à supposer qu'il soit confirmé, n'aurait pas d'incidence importante en termes de contamination.

Les données relatives aux produits d'origine animale du milieu terrestre sont peu nombreuses et ce sont surtout des modèles physiologiques d'évolution du tritium (vs. les comportements de l'eau et de la matière organique des animaux) qui ont été développés et qui ont fait l'objet de publications.

On ne note pas, dans les échantillons de produits d'origine animale mesurés en milieu terrestre en France, de valeurs particulièrement élevées. De plus, les évaluations réalisées par divers auteurs ne conduisent pas à considérer cette voie de transfert comme particulièrement importante. Par ailleurs, les facteurs de transfert déterminés récemment sont toujours inférieurs à l'unité (et même inférieurs à 0,5 pour le tritium ingéré par l'animal sous forme de matière organique végétale), ce qui va dans le sens d'une absence de bioaccumulation de tritium dans les denrées d'origine animale.

Pour les milieux aquatiques marin et continental, il est acquis que le transfert d'eau tritiée aux organismes aquatiques conduit très rapidement à un équilibre entre l'eau tritiée (HTO) dans le milieu d'exposition et le tritium libre dans les tissus biologiques ; les échanges mettant en jeu des formes organiques du tritium sont encore méconnus. Plus particulièrement pour les poissons marins ou les poissons d'eau douce qui constituent les compartiments pour lesquels il existe le plus de données in situ, mais aussi pour les invertébrés marins, des facteurs de concentration $\text{OBT}_{\text{organisme}}/\text{HTO}_{\text{eau}}$ supérieurs à 1 ont été déterminés en diverses situations ; il semble que de telles observations sont en rapport avec l'origine et la forme physico-chimique du tritium incorporé (ingestion de molécules organiques tritiées). Dans ces conditions, le constat de facteurs de concentration supérieurs à 1 par rapport à l'eau du milieu ambiant ne peut pas être interprété comme étant représentatif d'une bioaccumulation et il conviendrait de déterminer le facteur de concentration du tritium organiquement lié dans l'organisme animal à partir de la mesure du tritium contenu dans les produits consommés par les animaux.

7| Modélisations du comportement du tritium dans les écosystèmes

7|1| Écosystèmes terrestres

7|1|1| Modèles existants

De nombreux modèles ont fait l'objet d'intercomparaisons dans le cadre de groupes de travail internationaux consacrés au tritium, tels que BIOMOVs et BIOMOVs II (BIOSpheric Model Validation Study) - la synthèse a été publiée par Barry *et al.* (1999) - ainsi que de programmes de l'AIEA, BIOMASS 3 et EMRAS. Par ailleurs, une revue complète des modèles a été effectuée par Le Dizes-Maurel (2004) préalablement au développement et aux tests de sensibilité, d'incertitudes et d'intercomparaisons du modèle TOCATA (Transfert of carbon and tritium in terrestrial and aquatic environments) de l'IRSN (Le Dizes-Maurel, 2004 ; 2005-a ; 2005-b ; 2005-c ; 2006). De plus, un groupe de travail EMRAS



Il a été constitué par l'AIEA (Working Group 7 – « Tritium Accidents » lancé en janvier 2009), pour approfondir la modélisation des transferts de tritium à la suite d'un rejet atmosphérique accidentel.

L'étendue des travaux relatifs à ce sujet est particulièrement vaste. Un panorama complet, même peu détaillé, nécessiterait d'écrire les équations et paramètres associés à chacun des modèles pour faire ressortir précisément les analogies et les différences en termes de conceptualisation et de valeurs numériques. Dans les paragraphes qui suivent, ne sont donc présentées que les grandes lignes des travaux précités, auxquels le lecteur pourra se reporter pour de plus amples précisions.

7.1.1.1 Modélisation des interactions au niveau du sol

Divers modèles permettent de simuler les transferts du tritium dans le système sol-plante, après un rejet atmosphérique de courte durée. Dans ces modèles, les échanges entre compartiments et les échanges avec l'air qui se trouve en contact avec le sol sont exprimés le plus souvent par un système d'équations différentielles linéaires du premier ordre qui traduisent le bilan des entrées et des sorties du tritium dans le compartiment hydrique de l'horizon superficiel du sol. D'une manière générale, les entrées dans ce compartiment sont, comme dans le cas d'une contamination chronique, les flux associés aux dépôts sec et humide de HTO sur le sol ; les sorties sont les flux associés à la réémission d'eau tritiée à partir du sol par évaporation, à l'absorption par les racines des plantes et aux pertes par migration verticale dans les horizons sous-jacents. Les modèles diffèrent par le traitement ou non d'un de chacun de ces processus et par la façon dont ceux-ci sont formalisés.

Ainsi, plusieurs approches sont classiquement utilisées pour modéliser les processus des dépôts du HTO atmosphérique au sol.

Une première approche utilise le concept de vitesse de dépôt, selon lequel le flux arrivant à la surface du sol est égal à la concentration de la vapeur d'eau tritiée (HTO) dans l'air multipliée par la vitesse de dépôt. Dans ce cas, le processus de réémission est modélisé séparément, généralement par une équation du premier ordre dans lequel une fraction constante (par unité de temps) du tritium présent dans l'eau du sol s'évapore.

Dans une seconde approche, le flux net d'eau tritiée est supposé proportionnel, par le biais d'une *vitesse d'échange*, au gradient de concentration volumique de la vapeur d'eau tritiée entre un niveau de référence, situé généralement à 1 m au dessus du sol, et la surface du sol. Lorsque le sol a été exposé à un apport de tritium et se trouve de nouveau en contact avec une atmosphère dépourvue d'eau tritiée, se produit le phénomène inverse du précédent, i.e., l'évaporation du tritium, modélisée de la même façon, avec la prise en compte d'une vitesse d'échange.

Un troisième type de modèles considère un dépôt net (apport - pertes) modélisé par des coefficients de transfert constants.

Des modèles différents sont également utilisables pour simuler les processus de diminution de l'activité du tritium dans le sol (évaporation, absorption racinaire et migration verticale vers les horizons sous-jacents du sol).

Dans certains modèles, l'évaporation est traitée dans l'équation décrivant le dépôt. Lorsqu'elle fait l'objet d'un module séparé, les modèles intègrent soit des coefficients de transfert constants, soit un taux de réémission (égal au rapport entre la quantité de HTO réémis au fil du temps par la quantité totale de HTO déposée, exprimé en général en % par unité de temps). D'autres modèles, qui font appel à des calculs complexes de bilans d'énergie pour estimer le flux de vapeur d'eau tritiée émanant du sol, requièrent la détermination d'un grand nombre de paramètres micro-météorologiques, dont des mesures de terrain délicates à réaliser.

L'absorption racinaire est, soit supposée égale à la transpiration du végétal (modélisations agronomiques connues), soit décrite à l'aide de coefficients de transfert constants.

Les pertes par migration verticale peuvent être décrites par l'utilisation de coefficients de transfert constants ou par des équations classiques de migration ou encore par un panachage des deux approches.

Pour les cas de contamination chronique, des approches similaires (comportant de multiples variantes) sont utilisables pour estimer la concentration moyenne de tritium dans l'eau du sol à l'équilibre :

- l'établissement d'un bilan du tritium dans la couche de surface du sol, en faisant la différence des entrées (processus de dépôt sec et/ou humide) et des sorties (infiltration, absorption racinaire, réémission partielle) ;
- une approche semi-empirique dans laquelle on suppose que la concentration de HTO dans le sol dépend essentiellement du dépôt humide par précipitation ou bien au contraire, qu'elle est due seulement au dépôt sec ;
- une approche simplifiée dans laquelle la concentration de tritium dans l'eau du sol est supposée en équilibre avec celle du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique ; avec cette approche, la concentration de tritium dans l'eau du sol est considérée égale à un tiers de sa concentration dans la vapeur d'eau atmosphérique.

7.1.1.2 Modélisation des transferts de tritium aux végétaux

Pour les cas de contamination chronique, les activités de tritium dans les plantes sont le plus souvent estimées à l'aide de modèles basés sur l'hypothèse de l'activité spécifique¹¹ avec différentes variantes :

- l'activité spécifique de tritium dans tout le végétal ou du pool d'eau du végétal est identique à celle du tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique ;
- l'activité spécifique du tritium de tout le végétal est égale à celle du tritium de la vapeur d'eau atmosphérique, multipliée par la proportion de matière sèche du végétal ;
- l'activité spécifique du tritium du pool d'eau du végétal dépend de l'effet du sol en prenant en compte explicitement ou implicitement des activités de tritium dans la vapeur d'eau atmosphérique et dans la solution du sol (effet de dilution du HTO atmosphérique).

Dans ces modèles, l'activité du tritium dans la matière organique de la plante (OBT) est déterminée de façon empirique en multipliant la concentration en eau libre de la plante par le rapport OBT/HTO à l'équilibre (généralement le rapport est pris égal à 0,9).

Pour les cas de contamination accidentelle, plusieurs modèles décrivent les échanges plante-atmosphère selon des relations de type bilan, en additionnant le flux positif ou négatif de l'eau tritiée à travers les stomates du couvert végétal et l'apport éventuel d'eau tritiée à partir de l'eau du sol. Les modèles diffèrent par la considération ou non de différents processus et par la façon dont ceux-ci sont décrits : les dépôts de HTO atmosphérique sur la végétation sont déterminés de façon analogue aux dépôts au sol en utilisant une vitesse de dépôt, un coefficient d'échange ou un dépôt net modélisé par des coefficients de transfert constants.

De même, les phénomènes de réémission de tritium par évaporation à partir de la plante, l'absorption racinaire et les processus de formation et d'élimination du tritium organique dans les plantes sont, selon les modèles, traités ou non explicitement. Selon les modèles, les processus de réémission de l'eau tritiée par évaporation à partir de la plante peuvent être décrits de façon indépendante des dépôts ou des vitesses d'échange ou encore, à l'aide de coefficients de transfert constants. L'absorption racinaire est supposée égale à la transpiration foliaire ou prise en compte par des vitesses d'échanges déterminées à partir des différences d'humidité, ou encore décrite à partir de coefficients de transfert constants. Enfin, les processus de formation et d'élimination du tritium organique dans les plantes sont décrits par l'utilisation de coefficients de transfert (constants ou variables avec les conditions environnementales) ou encore par l'utilisation de courbes de croissance de la plante.

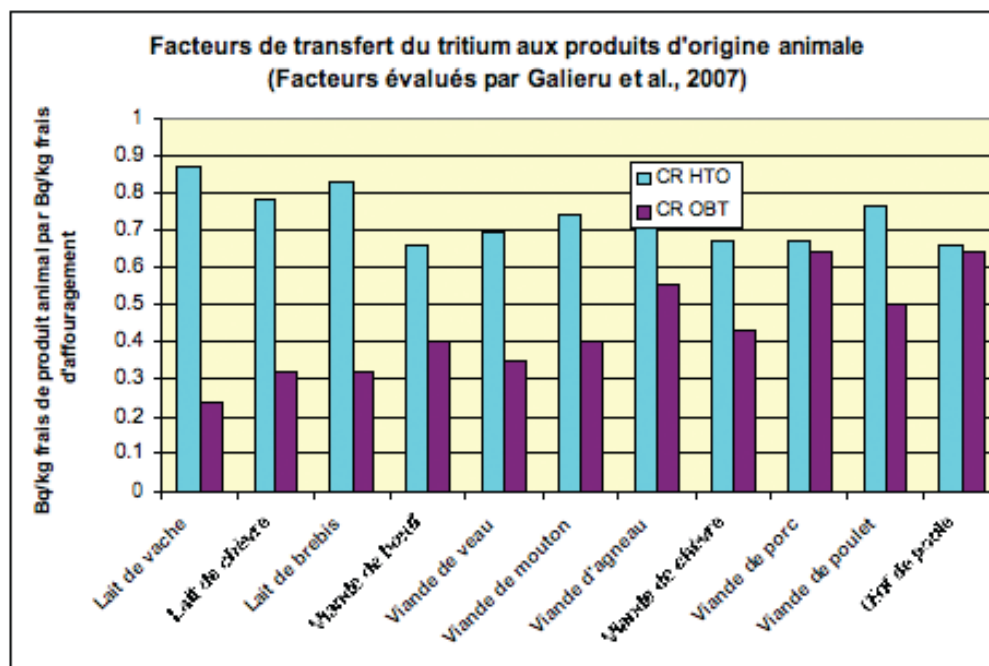
¹¹ Hypothèse selon laquelle le rapport isotopique $^3\text{H}/^1\text{H}$ reste le même dans tout ou partie des compartiments de l'environnement.

Pour les cas de contamination chronique de l'air, il existe de nombreux modèles de transfert du tritium aux animaux et à leurs produits, qui reposent sur l'hypothèse d'un équilibre isotopique entre compartiments, compte tenu des proportions relatives d'humidité de l'air et de l'eau du produit animal considéré. Malgré leur simplicité et le peu de données expérimentales qu'ils requièrent, ces modèles ne sont en effet pas réalistes dans la mesure où ils ne tiennent pas compte du tritium organique qui a un temps de résidence de quelques dizaines de jours à quelques centaines de jours (Belot et al., 1996). D'autres modèles traitent explicitement les deux pools — eau et matière organique — des produits d'origine animale considérés; ils reposent alors sur l'hypothèse selon laquelle les activités spécifiques en HTO et OBT dans ces produits sont égales à l'activité spécifique moyenne de tritium dans l'eau incorporée dans l'animal, pondérée par les fractions d'eau provenant des différentes voies d'incorporation : nourriture de l'animal, eau de boisson, inhalation et absorption cutanée.

Pour le cas de rejets de courte durée, la plupart des modèles considèrent l'ingestion d'aliments (herbe essentiellement) et l'absorption par inhalation comme les principales voies d'incorporation de tritium. Les processus métaboliques y sont le plus souvent décrits en considérant les deux compartiments — eau et matière sèche — de l'animal. Les principales différences qui existent entre les modèles concernent, d'une part les valeurs de certains paramètres (vitesse d'élimination du tritium de l'animal, vitesse de formation de OBT à partir de l'eau tritiée présent dans l'animal), d'autre part la description de mécanismes relatifs au tritium organique : ingestion d'OBT et processus de métabolisation au sein de l'organisme (Barry et al., 1999).

Galeriu et al. (2007) ont réalisés des calculs très détaillés des facteurs de transfert du tritium à divers produits d'origine animale en tenant compte des cinétiques d'incorporation et de décorporation des formes HTO et OBT et surtout en tenant compte de façon précise des caractéristiques zootechniques (composition de ration alimentaire animale) et physiologiques (taux de croissance, teneurs en eau...) des animaux concernés. Les facteurs relatifs au tritium sous forme OBT sont systématiquement inférieurs à ceux relatifs au tritium sous forme HTO (Fig. 7.1) et dans tous les cas inférieurs à l'unité. Compte tenu de l'absence de bioaccumulation de tritium dans les végétaux, ces valeurs tendraient à montrer également une absence de bioaccumulation de tritium dans les produits animaux terrestres.

Figure 7.1 - Valeurs calculées de facteurs de transfert aux produits d'origine animale (d'après Galeriu et al., 2007).



Dans le modèle TOCATA développé par l'IRSN, la biosphère est modélisée sous une forme très simplifiée et non exhaustive. La modélisation représente l'atmosphère (air de la couche limite atmosphérique), l'écosystème agricole (couche racinaire du sol, végétaux et animaux) et le système anthropique (denrées). Les voies de transfert considérées sont les suivantes :

- le transfert net de la vapeur d'eau tritiée atmosphérique à l'eau (diffusion ou absorption) et de la matière organique (photosynthèse nette) du système foliaire des végétaux agricoles ; le tritium sous forme organique échangeable est considéré comme faisant partie du pool de tritium sous forme HTO ;
- le transfert net de vapeur d'eau tritiée atmosphérique à la solution du sol ;
- l'absorption d'eau par les plantes ou les animaux, à partir d'eau du sol supposée contaminée par irrigation ;
- l'ingestion par l'homme de produits végétaux et animaux contaminés.

Le modèle utilise un système d'équations différentielles traduisant la conservation des activités de tritium (respectivement HTO et OBT) dans les végétaux et dans les animaux. L'un des intérêts de ce modèle est l'utilisation du même système d'équations pour un rejet discret ou pour un rejet continu. Dans ce dernier cas, le modèle aboutit à des équations analogues à celles des modèles classiques utilisés pour des contaminations chroniques.

Les hypothèses et principales spécificités du modèle TOCATA sont résumées dans les paragraphes qui suivent.

7|1|2|1| Interactions au niveau du sol

Le dépôt humide de HTO atmosphérique au sol via les précipitations est négligé. Dans la version actuelle du modèle, on ne détermine pas la vitesse de dépôt sec en fonction du type de couverture végétale et on ne tient pas compte des caractéristiques aérodynamiques de la couche limite atmosphérique. Un même flux est donc calculé pour toutes les composantes végétales, à partir d'une vitesse de dépôt supposée constante au cours du temps.

L'activité déposée sur le sol est supposée instantanément mise à disposition du sol ; l'évaporation est modélisée indépendamment du dépôt par une équation dans laquelle une fraction constante du tritium de l'eau du sol s'évapore par unité de temps.

Par ailleurs, les transferts associés à l'absorption par les racines des plantes sont supposés égaux aux transferts liés à la transpiration des plantes, eux-mêmes moyennés au cours du temps en tenant compte implicitement de l'alternance jour/nuit. Les processus d'évapotranspiration sont traités de façon simple et indépendamment du dépôt par l'utilisation de coefficients de transfert.

Les vitesses d'infiltration de l'eau dans le sol sont supposées suffisamment faibles (absence de pluie) pour être négligées face aux vitesses de diffusion ; le flux associé à la migration verticale est supposé dépendre uniquement d'une vitesse de diffusion (fonction du temps).

Seule la forme HTO est traitée dans l'air ; la conversion microbienne $HT \rightarrow HTO$ au niveau du sol est donc négligée. De même, la formation d'eau tritiée par la dégradation du tritium organique de l'humus par l'activité microbienne n'est pas prise en compte.

7|1|2|2| Interactions dans le compartiment végétal

Selon les végétaux, sont modélisés la biomasse aérienne chlorophyllienne (tiges, feuilles) et l'organe consommé (fruit et racine tubérisée). Le système racinaire n'est pas considéré explicitement ; il est supposé implicitement que l'activité spécifique de tritium y est égale à celle du dans les parties aériennes du végétal. Deux pools de tritium sont modélisés : le tritium sous forme organique non échangeable OBT et le tritium sous forme échangeable (HTO et fraction labile du tritium organique).

Pour le tritium HTO, les activités spécifiques sont calculées à partir d'un bilan des entrées et des sorties de tritium dans le compartiment foliaire. L'équation utilisée comporte :

- un terme qui traduit le flux, positif ou négatif, d'eau tritiée à travers les orifices stomatiques des feuillages par des vitesses d'échange pondérées par les masses volumiques relatives de la vapeur d'eau dans les végétaux et dans l'air ainsi qu'un facteur de discrimination isotopique ;
- un terme qui représente l'apport éventuel d'eau tritiée à partir de l'eau du sol.

Par ailleurs l'évaporation fait l'objet d'une équation distincte, réciproque du premier terme de l'équation précédente.

Pour le tritium organiquement lié, la modélisation développée dans TOCATA repose sur un couplage entre les courbes d'évolution de la contamination atmosphérique par le tritium et de croissance des végétaux. Ces courbes sont discrétisées en supposant une succession d'intervalles de temps durant lesquels l'activité spécifique de tritium sous forme HTO de l'air serait constante et le rapport isotopique de l'hydrogène assimilé par les végétaux serait en équilibre avec le rapport isotopique dans de l'air ambiant. La concentration de tritium organique dépend donc du facteur de dilution du HTO atmosphérique par l'eau du sol dans les feuilles, du facteur de discrimination isotopique du tritium dans la plante et de la proportion d'eau équivalente à celle que dégagerait la combustion complète de la fraction sèche de la plante.

7|1|2|3| Interactions dans le compartiment animal

Les voies principales d'incorporation de tritium dans les produits d'origine animale traitées dans le modèle TOCATA sont l'ingestion d'aliments végétaux et d'eau d'abreuvement, l'inhalation et l'absorption cutanée. Ces quatre voies sont considérées pour les transferts sous forme d'eau tritiée alors que pour le tritium organique, les processus retenus sont l'ingestion de la matière organique des aliments et leur métabolisation. Celle-ci considère la redistribution du tritium ingéré à l'organe et l'élimination du tritium organique par l'organe en question, en supposant que la biomasse animale totale reste constante (animal adulte) et qu'il s'établit un équilibre instantané entre l'accumulation de tritium et son élimination. La spécificité du modèle est de considérer chacun des processus traités par des équations explicites. Celles-ci sont fondées sur la description cinétique des flux d'eau et de matière sèche.

7|2| Écosystèmes aquatiques

7|2|1| Modélisation de la dispersion du tritium en milieu marin

Le tritium dans la molécule d'eau HTO constitue un marqueur couramment utilisé pour les études de dispersion en milieu marin car :

- il est strictement conservatif en solution ;
- les rejets industriels sont bien connus ;
- les rejets induisent des concentrations significatives faciles à mesurer pour les rejets des usines de traitement de combustibles usés.

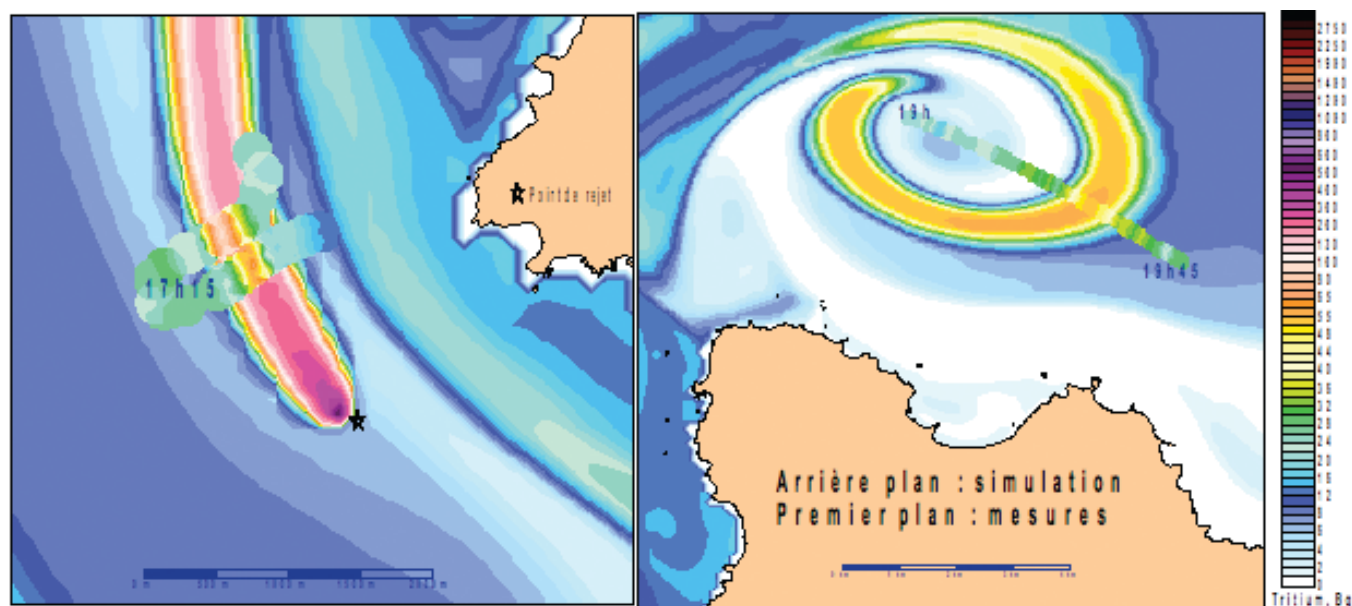
Le tritium a été utilisé par l'IRSN pour suivre la dispersion des rejets industriels à l'échelle de la Manche et dans le champ proche de l'émissaire de rejet de l'usine de traitement de combustibles usés de La Hague. Il a permis de valider des modèles hydrodynamiques de dispersion dans le cadre du programme DISPRO. Près de 15 000 mesures de tritium ont été réalisées avec une haute résolution (100 mètres) et une haute fréquence (30 secondes). Elles ont permis de suivre la dispersion des panaches dans des conditions variées de rejet, de marée et de vent.

Après le programme DISPRO, la zone du cap de La Hague est l'une des mieux connues du monde du point de vue de la dispersion en mer. L'intérêt des travaux réalisés dans ce cadre n'est pas seulement de mieux connaître les conditions de dispersion à partir du principal émissaire de tritium dans l'environnement, il est également de tester la capacité des modèles à représenter la dispersion dans une zone difficile à simuler en raison de sa dynamique et de sa complexité (Fig. 7.2). Les modèles validés pour cette zone peuvent ensuite être appliqués dans la plupart des mers côtières. L'IRSN a aujourd'hui les moyens de simuler la dispersion de rejets chroniques ou accidentels dans des conditions réalistes, depuis le champ proche d'un émissaire jusqu'à l'ensemble des mers du nord-ouest de l'Europe. Grâce aux mesures de tritium, les modèles ont des incertitudes connues, remarquablement faibles pour des modèles de l'environnement : l'écart entre les activités volumiques mesurées et les activités volumiques déterminées par calcul est en moyenne de 50 % (Bailly du Bois *et al.*, 2005, 2006).

Dans la continuité de ces travaux, l'IRSN poursuit des études utilisant le tritium comme traceur de la dispersion verticale à proximité immédiate d'un émissaire (programme DISVER 2008 - 2010).

Une fois validés, les modèles de dispersion permettent de tester des hypothèses sur le comportement du tritium rejeté (rapport OBT/HTO, par exemple). Les modèles de dispersion peuvent également être complétés par des modèles de transfert entre le compartiment liquide et les compartiments biologiques et sédimentaires.

Figure 7.2 - Exemple de comparaison modèle / mesures utilisant le tritium dissous comme traceur des rejets dans l'environnement proche d'un émissaire (Bailly du Bois *et al.*, 2006)



7|2|2| Modélisation de la dispersion du tritium et des processus physiques associés au sein des hydrosystèmes d'eau douce

Transferts au sein des hydrosystèmes. Dès lors que du tritium se retrouve dans un hydrosystème, son devenir dépend des mouvements des masses d'eau et des gradients de concentration. Les mouvements des masses d'eau sont décrits par les lois classiques de l'hydrodynamique et déterminent le champ des activités volumiques sous l'effet des mécanismes de transport de diffusion et de dispersion. En pratique, il existe de nombreuses méthodes pour modéliser ces mécanismes. Ces méthodes s'échelonnent depuis des modèles numériques qui décrivent l'évolution temporelle des activités volumiques en tout point du domaine, jusqu'aux modèles de dilution qui s'appuient sur des hypothèses de dilution complète et instantanée des flux de tritium au sein des volumes d'eau considérés. Le choix de la méthode doit tenir compte de la dynamique des flux tritiés (permanents ou transitoires), des caractéristiques de l'hydrosystème (rivière, lac...) et de la localisation de la zone d'intérêt (distance au rejet, zone de bon mélange...).

De récents travaux menés dans le cadre du programme EMRAS (Environmental Modelling for Radiation Safety) de l'AIEA ont montré la pertinence de plusieurs modèles opérationnels utilisés pour représenter les transferts le long d'un hydrosystème tel que celui de la Loire (Goutal *et al.*, 2008). Pour le cas particulier des écoulements lents associés à des hauteurs d'eau importantes (lacs, barrages), il est également nécessaire de tenir compte des caractéristiques thermiques de la colonne d'eau desquelles dépendent les échanges verticaux.

Apports anthropiques directs. Du point de vue de la modélisation, les rejets d'effluents liquides dans un milieu aquatique constituent des données d'entrée qui dépendent de l'espace et du temps et qui s'expriment en débit d'activité ($\text{Bq}\cdot\text{s}^{-1}$). De façon générale, le fonctionnement des installations nucléaires conduit à des rejets de type « bouffées ». Ceci induit d'importantes variations spatiotemporelles des activités volumiques de l'hydrosystème et soulève des interrogations quant à la pertinence des modèles à l'équilibre (Yankovich *et al.*, 2008).

Apports du bassin versant. En pratique, les apports d'un bassin versant sont modélisés par des fonctions de transfert plus ou moins empiriques qui tiennent compte des caractéristiques du bassin versant (pente, type et nature du sol, couvert végétal, ...), de la météorologie (pluviométrie) et des conditions de contamination du bassin versant (dépôt atmosphérique, contamination partielle ou ponctuelle...). Pour le tritium, des recherches bibliographiques (Garcia-Sanchez, 2005) ont montré qu'il existe peu de travaux pour caractériser ces fonctions de transfert. A partir d'un dépôt sur un bassin versant, les quelques études disponibles indiquent une période moyenne de transfert à l'exutoire de 3,5 ans (Dominik *et al.*, 1987; Joshi and McCrea, 1992).

Échanges avec l'atmosphère. Les échanges de tritium entre les hydrosystèmes et l'atmosphère s'effectuent principalement selon deux mécanismes : les échanges entre l'eau tritiée de l'hydrosystème et la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère et les apports par les précipitations. L'annexe 2 présente des équations qui permettent de décrire ces deux mécanismes.

Échanges avec l'eau interstitielle des sédiments. Bien que ces échanges puissent, dans certains cas, représenter la principale source de contamination d'un hydrosystème (Bolsunovsky and Bondareva, 2003), ils sont rarement traités dans les modèles de transfert qui s'intéressent la plupart du temps à l'activité massique ou surfacique du sédiment sec. Pourtant, un sédiment est constitué d'eau et de particules solides et l'activité massique de ce mélange n'est pas nulle dès lors que du tritium se trouve dans l'eau interstitielle. L'annexe 3 présente les principales équations décrivant les phénomènes mis en jeu lors de ces échanges.

Conclusions. A l'heure actuelle, la modélisation des transferts abiotiques de tritium au sein des hydrosystèmes continentaux traite essentiellement les transferts dans la colonne d'eau par les mécanismes de transport, de diffusion et de dispersion. Les échanges aux interfaces avec l'atmosphère et les sédiments ne sont guère considérés. De même, les échanges entre les formes HTO et OBT ne sont généralement pas considérés dans les bilans de masse présentés pour les hydrosystèmes.

Modélisation des transferts de tritium aux organismes aquatiques

Les modèles communément utilisés reposent pour la plupart sur l'hypothèse d'un équilibre isotopique, qui se traduit par une activité spécifique constante du tritium dans chacun des compartiments de l'écosystème. Cette approche repose sur le principe d'un échange isotopique complet entre le tritium et le protium, qui ne peut cependant être réalisé sur de courtes périodes de temps, notamment quand le tritium est incorporé dans la matière organique, pour des raisons de cinétique d'échange faible (Ciffroy *et al.*, 2006 ; Yankovich *et al.*, 2008). D'autres approches ont donc été développées ; elles seront abordées ci-après d'une part pour les aspects abiotiques, d'autre part pour le transfert aux organismes dulçaquicoles, en complément des modèles classiques.

La diversité des modèles publiés étant relativement faible, les équations génériques correspondantes sont présentées. Le lecteur est toutefois invité à se référer aux documents d'origine pour une utilisation correcte des modèles présentés, afin de se conformer aux indications des modélisateurs quant au domaine de validité de leurs approches ainsi qu'aux hypothèses afférentes.

7|2|2|1| Prise en compte de la spéciation du tritium

La distinction entre les formes HTO et OBT est essentiellement établie d'un point de vue métrologique, et résulte notamment de l'existence d'une fraction non-échangeable de tritium fixé à la matière organique. Compte tenu des processus d'échange en jeu, le comportement de la fraction échangeable de l'OBT est devrait être modélisé conjointement avec celui de l'espèce HTO (Galeriu *et al.*, 2005). Toutefois, les documents de référence relatifs à la description des modèles présentés ci-après ne comportent pas nécessairement cette information.

7|2|2|2| Cas du tritium libre

La « littérature » indique pour le tritium sous forme HTO, dans les conditions des rejets chroniques, une mise en équilibre du tritium libre de l'organisme et du tritium sous forme HTO du milieu d'exposition, dans un délai de l'ordre de la minute pour les végétaux et de la journée pour les poissons (Calmon et Garnier-Laplace, 2001). Mais le tritium de l'eau tritiée peut également être incorporé dans des molécules organiques lors de leur synthèse biologique, du fait notamment de la croissance des individus et des populations. Deux types de modélisations, décrites ci-dessous, rendent compte de ces deux approches.

Modélisation à l'équilibre. De façon classique, les transferts des isotopes radioactifs de période relativement longue d'éléments essentiels régulés par des processus biologiques et très mobiles dans l'environnement, tels que le tritium, le carbone-14 ou le chlore-36, sont modélisés via le concept d'activité spécifique, définie comme l'activité du radionucléide rapportée à la masse de l'élément stable. En effet, indépendamment de sa propriété radioactive, le radionucléide se comporte de la même manière que l'élément stable, en termes physico-chimiques et biologiques : le flux du radionucléide entre deux compartiments est donc déterminé par celui de l'élément stable.

Selon ce principe, la proportion entre le tritium (T) et la forme stable de l'élément hydrogène (H) est conservée tout au long des processus de transfert, ce qui revient à dire que l'activité spécifique du tritium demeure inchangée du fait du transfert. L'expression mathématique de ce principe est donnée par l'Équation 1.

$$AS_j = \frac{[T]_j}{[H]_j} \quad \text{Équation 1}$$

Avec :

- AS_j activité spécifique du tritium dans le compartiment j (Bq.g^{-1} d'hydrogène) ;

- $[T]_j$ activité massique du tritium dans le compartiment j (Bq.kg^{-1}) ;
- $[H]_j$ concentration massique de l'élément hydrogène dans le compartiment j (g.kg^{-1}).

Toutefois, il peut se produire un phénomène de discrimination isotopique entre la forme radioactive et la forme stable du même élément lors de certains échanges physico-chimique (par exemple lors de l'évaporation de l'eau), en raison de la différence de masse atomique (l'isotope de masse la plus élevée restant préférentiellement dans la phase la plus dense). Ainsi, l'activité spécifique du tritium dans le compartiment j résultant du transfert à partir de N compartiments peut s'exprimer sous la forme de l'Équation 2.

$$AS_j = \frac{\sum_{i=1}^N q_i \cdot DF_i \cdot [T]_i}{\sum_{i=1}^n q_i \cdot [H]_i} \quad \text{Équation 2}$$

Avec :

- q_i flux de l'élément hydrogène du compartiment i vers le compartiment j (g.j^{-1})
- DF_i facteur de discrimination isotopique rendant compte de l'influence de la différence de masse entre le tritium et l'hydrogène stable sur leurs taux de transfert.

Alors l'activité massique du tritium dans le compartiment j est obtenue en multipliant la concentration massique de l'élément hydrogène dans ce même compartiment par l'activité spécifique du tritium.

Ce principe de l'équilibre complet en termes d'activité spécifique, qui correspond à une mise en équilibre rapide entre l'eau tritiée (HTO) du milieu aquatique environnant et le tritium libre de l'organisme vivant (TFWT), a été principalement appliqué aux poissons et s'exprime par l'Équation 3.

$$[TFWT]_{fish} = H_{fish} \cdot [HTO]_{wat} \quad \text{Equation 3}$$

Avec :

- $[TFWT]_{fish}$ activité massique du tritium dans l'eau libre des poissons (Bq.kg^{-1}) ;
- H_{fish} teneur en eau du poisson ($0,78 \text{ l.kg}^{-1}$) ;
- $[HTO]_{wat}$ activité volumique de l'eau tritiée HTO du milieu aquatique ambiant (Bq.l^{-1}) ;

Cette approche peut être considérée comme valide pour tous les organismes aquatiques.

Modélisation dynamique. L'approche précédente a été proposée sous forme dynamique par Ciffroy *et al.* (2006 ; Équation 4).

$$[TFWT]_{fish}(t) = H_{fish} \cdot [HTO]_{wat}(t) \quad \text{Equation 4}$$

Avec :

- $[TFWT]_{fish}(t)$ activité massique du tritium dans l'eau libre des poissons au temps t (Bq.kg^{-1}) ;
- H_{fish} teneur en eau du poisson (entre 0,8 et $0,95 \text{ l.kg}^{-1}$) ;
- $[HTO]_{wat}(t)$ activité volumique de l'eau tritiée HTO du milieu aquatique ambiant au temps t (Bq.l^{-1}).

Intercomparaison de modèles. En vue de tester la représentativité de différents modèles de transfert de tritium dans l'environnement, l'AIEA a, dans le cadre du programme EMRAS, mis en place un groupe de travail dédié, qui a défini neuf scénarios pour lesquels les résultats des modélisations ont été comparés à des données mesurées. Parmi ceux-ci, le scénario « Perch Lake » se rapportait à la prédiction des activités massiques de tritium dans des moules soumises à une modification brutale des niveaux ambiants de tritium. Les cinq modèles utilisés pour

Tableau 7.1 - Modèles participant au scénario « Perch Lake » dans le cadre du programme EMRAS (d'après Yankovich et al, 2008)

Modèle et/ou organisme	Pays d'origine	Référence
Japanet (NIRS)	Japon	Pas de document cité
SRA	Japon	Pas de document cité
AQUATRIT	Roumanie	Galeriu et al, 2005
OURSON (EDF)	France	Ciffroy et al, 2006
BIOCHEM	Allemagne	Baumgärtner, 2000 et 2005 Baumgärtner et Donhaerl, 2004 Baumgärtner et Kim, 2000

les calculs (Tab. 7.1) ont bien déterminé l'activité massique d'équilibre de HTO dans les moules, l'écart entre les résultats modélisés et les résultats de mesure ne dépassant pas plus d'un facteur 1,3 (Yankovich et al, 2008).

7|2|2|3| Cas du tritium organiquement lié

Formation à partir de tritium libre présent dans l'eau. L'incorporation sous forme organique de tritium de l'eau (HTO) dans les tissus des organismes exposés résulte de différents processus, dont la photosynthèse et la croissance. Le traitement de ces phénomènes est indispensable pour modéliser de façon correcte les transferts de tritium aux organismes vivants. Cette approche a été notamment mise en œuvre par Myamoto *et al.* (1995), qui représentent les organismes comme la somme de deux compartiments, l'un correspondant au tritium libre de l'organisme, échangeant avec le milieu extérieur, et l'autre au tritium organiquement lié. Deux types de modélisation correspondant à cette approche, l'une à l'équilibre et l'autre dynamique, sont présentées en annexe 4.

Transferts de tritium organique. La modélisation des transferts de tritium organique en tant que tels est traitée généralement en considérant la voie trophique (cf. paragraphe précédent). Parallèlement, la possibilité de transferts de tritium organique dissous a également été envisagée par différents auteurs, dont Galeriu *et al.* (2005). Ce processus, qui conduit à des facteurs de concentration $[OBT]_{\text{organisme}}/[HTO]_{\text{eau}}$ qui peuvent être très supérieurs à 1, est documenté pour des espèces marines (Strack *et al.*, 1983). Il affecterait suivant une intensité décroissante le phytoplancton, le zooplancton, et les moules, et dépendrait d'une part des espèces vivantes, d'autre part de la forme chimique du tritium organique dissous (DOT). Aucune information particulière aux eaux douces n'est disponible à la connaissance des auteurs.

Dans le cadre du programme EMRAS, EDF a proposé, dans le cadre du scénario « Perch Lake », une modélisation tenant en compte de l'apport d'OBT par voie trophique aux animaux aquatiques (EMRAS TCWG, 2006). Cette modélisation suppose que la concentration d'OBT dans les animaux est contrôlée par un taux de transfert entre la nourriture et les organismes ainsi que par un taux d'alimentation spécifique (10^{-2} j^{-1} pour les poissons). Par ailleurs, la concentration d'OBT dans la nourriture est fonction de celle dans l'eau. Finalement, la modélisation employée par EDF est basé sur un taux de transfert entre l'eau et les poissons cohérent avec un ratio OBT/HTO apparent de 0,45, tel que proposé par Kirchmann *et al.* (1979).

Intercomparaison de modèles. Le scénario « Perch Lake » prévoyait également une intercomparaison des modèles concernant l'accumulation d'OBT dans ces organismes. Yankovich *et al.* (2008) indiquent que, si les cinq modèles testés montrent une allure similaire pour ce qui concerne l'accumulation d'OBT dans les moules, les taux de formation et les concentrations initiales d'OBT prédites par les différentes approches diffèrent significativement, ce qui est susceptible d'influencer le taux d'accumulation modélisé du tritium. Par ailleurs, même si les ré-

sultats finaux se trouvent dans une fourchette d'un facteur 3 par rapport aux résultats des mesures, la dynamique de leur évolution n'est pas bien reproduite par les modèles. Cela pourrait être lié à l'absence de modélisation de certains processus biologiques, tels que la perte de tritium due à la production d'œufs, qui entraîne une surestimation de l'OBT dans les organismes. Lorsque les processus de bioaccumulation d'OBT (formation à partir de HTO, accumulation directe par voie trophique) sont traités dans les modèles, par exemple en retenant l'hypothèse que la matière organique nouvellement formée dans l'organisme présente une concentration d'OBT identique à celle de son alimentation (OURSON¹² et AQUATRIT), la dynamique de la formation d'OBT ainsi obtenue est plus proche de celle observée.

7|3| Synthèse sur les modèles de transfert dans les milieux terrestres et aquatiques

Les modèles de transfert du tritium en milieu terrestre sont nombreux et variés. La plupart des connaissances relatives au comportement du tritium en milieu terrestre ont été acquises dans les années 80-90 et les travaux, puis la synthèse, réalisés par Belot *et al.* (1996) en décrivent l'essentiel.

Les avancées récentes concernent surtout la « complexification » des modèles pour tenter de prendre en compte l'ensemble des processus de transfert et l'intégration dans ceux-ci, des données biologiques plus précises (par exemple, modèles de croissance des végétaux, valeurs physiologiques de métabolisation des affouragements...). Les développements actuels de modèles tendent à mieux expliciter les phénomènes et, parmi les variables d'entrée nécessaires à ces modèles, de préciser celles relatives au fonctionnement du système sol - végétal - atmosphère (e.g. variations des humidités relatives des différents compartiments, cycles de croissance...) et aux données physiologiques animales (ingestion et élimination d'eau et de matière sèche, vitesse de croissance des organes...).

Les données purement radioécologiques spécifiques au tritium n'ont fait l'objet que de rares récentes expérimentations. On observe néanmoins un regain d'intérêt scientifique pour ce radionucléide, comme en témoignent les récents travaux d'équipes coréennes et nippones, qui réalisent des expérimentations sur le transfert aux végétaux asiatiques. À cet égard, une normalisation des protocoles expérimentaux et des présentations des résultats serait très utile pour établir une base de données de paramètres de transfert du tritium. Les recherches concernant les transferts aux productions animales sont, comme c'est le cas pour la plupart des radionucléides, peu nombreuses car particulièrement lourdes à mettre en œuvre. Les données acquises jusqu'ici semblent néanmoins suffisantes pour l'évaluation des transferts.

Il faut également souligner les biais possibles lors de la mesure du tritium (i.e., tout au long des opérations de prélèvement, conservation et préparation d'échantillons et du mesurage proprement dit), du fait de sa labilité intrinsèque, qu'il s'agisse d'échantillons de faible

¹² Dans la description du modèle fournie par EDF pour le TCWG, il est spécifié que celui-ci ne traite pas les mollusques. La concentration en HTO des mollusques a été déterminée comme étant en équilibre avec l'eau du sédiment. Le ratio OBT/HTO employé était de 0,45 (Kirchmann *et al.*, 1979)

activité prélevés in situ ou au contraire d'échantillons provenant d'expérimentations, de même que les précautions nécessaires lors de sa manipulation en laboratoire. Pour ces raisons, il paraît difficile d'améliorer significativement la connaissance précise du comportement du tritium dans l'environnement terrestre.

La modélisation des transferts de tritium au sein des hydrosystèmes continentaux est aujourd'hui incomplète. Pour ce qui concerne les processus physiques, ce sont les mécanismes de transport, diffusion et dispersion qui sont principalement traités, et ce pour la forme HTO dans la colonne d'eau. Les interactions aux interfaces (air et sédiments) ainsi que les échanges $\text{HTO} \leftrightarrow \text{OBT}$ ne sont généralement pas traitées, sans que leur importance soit véritablement connue.

Concernant les transferts de tritium aux organismes aquatiques, la plupart des modèles disponibles reposent sur une hypothèse d'équilibre isotopique ; il a été prouvé qu'elle était généralement satisfaisante pour le tritium libre des tissus. La modélisation des concentrations d'OBT dans les organismes aquatiques, moins fréquemment réalisée, est abordée de manière plus diverse, avec parfois une approche dynamique incluant des processus physiologiques. Ce sont d'ailleurs ces modèles qui donnent les résultats les plus proches des résultats des mesures lors des comparaisons modèles-mesures. Ils demandent cependant encore à être améliorés et validés.

Finalement, l'état de la modélisation reflète celui des connaissances sur les transferts de tritium, les aspects demandant à être approfondis se rapportant principalement aux formes organiques.

8 | Effets toxiques du tritium pour les organismes vivants terrestres et aquatiques

8.1 | Mécanismes d'interaction aux niveaux moléculaire et cellulaire

Le tritium est un émetteur bêta dont le rayonnement est de faible énergie (l'énergie maximale des électrons émis est de 18,6 keV, l'énergie moyenne est inférieure à 10 keV) et donc d'un faible pouvoir pénétrant (parcours libre moyen dans l'eau de 0,56 μm). De ce fait, le stress radiatif que peut engendrer le tritium est principalement lié à l'irradiation interne en cas d'incorporation à différents niveaux d'organisation biologique par un organisme vivant. La faible énergie du rayonnement peut conduire à un facteur amplificateur des conséquences biologiques lorsque le tritium est incorporé à la matière vivante, car le dépôt d'énergie se concentre localement. Ainsi, le parcours moyen du rayonnement bêta est du même ordre de grandeur que la dimension du noyau cellulaire et, lors de l'intégration de tritium à l'ADN du noyau cellulaire (par des nucléotides marqués au tritium), 70 % de l'énergie se dépose dans le noyau (NCRP, 1979).

A l'inverse de ce qui se passe pour d'autres radionucléides comme les isotopes de l'uranium, le tritium n'a aucune toxicité chimique puisque ce radionucléide est un isotope de l'hydrogène auquel il peut se substituer sous forme de gaz hydrogène (HT), d'eau tritiée (HTO) ou dans des molécules organiques (tritium organiquement lié ou OBT).

Lors d'une exposition importante sur une courte durée, l'incorporation de tritium dans les molécules organiques est faible, pour des raisons de cinétique de réaction, et l'essentiel de la dose (80% à 90 %) est imputable à l'eau tritiée. A l'opposé, dans les cas d'exposition chronique, c'est-à-dire prolongées sur des périodes significative vis-à-vis de la durée de vie de l'organisme, le pourcentage de tritium organiquement lié observé dans différents types d'organismes végétaux et animaux, augmente jusqu'à 20 à 70 % (Komatsu *et al.*, 1981; Mathur-De Vré and Binet, 1984), en raison du renouvellement plus faible du tritium organique comparativement à celui de l'eau tritiée. Ainsi, chez les mammifères, la

période biologique du tritium est en moyenne de 10 jours pour l'eau tritiée et peut varier de quelques jours à plusieurs années pour le tritium organiquement lié, en fonction du caractère labile des atomes d'hydrogène auxquels il se substitue dans les molécules organiques et de la durée de vie de la biomolécule (NCRP, 1979). De façon logique, le taux de renouvellement des cellules dans lesquelles le tritium s'incorpore joue également un rôle important, puisqu'il sera retenu plus longtemps dans les cellules ayant un faible taux de renouvellement (e.g. neurones ou ovocytes). De même, le stade de vie des organismes exposés gouverne la distribution de l'OBT compte tenu du taux de renouvellement cellulaire. Pour les adultes, l'OBT est majoritairement incorporé dans les tissus à renouvellement rapide, alors que, pour l'embryon, il se retrouve dans tous les tissus.

Comme la plupart des radionucléides, les radiations ionisantes émises par le tritium peuvent provoquer diverses lésions de l'ADN qui constituent un point crucial pour l'analyse des effets et in fine l'évaluation du risque lié à l'exposition au tritium, avec un large spectre de conséquences biologiques possibles (cancers, effets génétiques, anomalies du développement et effets sur la reproduction) (Straume and Carsten 1993). Divers types de lésions de l'ADN sont susceptibles d'être observés après une exposition au tritium (Moiseenko *et al.*, 2001), notamment des cassures double brin (CDBs) dont les conséquences délétères sont avérées. Des études menées sur des lignées cellulaires de mammifères exposées à un précurseur de l'ADN marqué au tritium (3H-thymidine) ont montré que ces CDBs sont principalement réparées par le processus de recombinaison homologue (Saintigny *et al.*, 2008). Ce phénomène de réparation des CDBs est essentiel au maintien de la stabilité génomique mais peut conduire, en cas d'excès, à des instabilités chromosomiques. Dans le cas du tritium, contrairement au cas des émetteurs de rayonnements gamma, ces réarrangements génomiques sont fortement induits dans le domaine des faibles doses, pour lesquelles aucune cytotoxicité n'est observée. Cette absence de toxicité cellulaire induit un surcroît de danger pour les organismes multicellulaires puisque la survie des cellules porteuses de réarrangements génomiques accroît les risques d'induction et de transmission transgénérationnelle d'altérations génétiques.

8.2 | Efficacité biologique relative du tritium pour les espèces non-humaines

L'effet d'une dose de rayonnement absorbée dépend de la nature et de l'énergie du rayonnement correspondant. Cette influence est prise en compte en introduisant un facteur de pondération caractéristique du rayonnement, dénommé RBE (Relative Biological Effectiveness), qui traduit l'efficacité relative des différents types de rayonnements à produire un même effet biologique. Expérimentalement, le RBE est le rapport entre la dose (ou le débit de dose) absorbée d'un rayonnement de référence (X ou γ) induisant un effet dans un système biologique donné et la dose absorbée du rayonnement en question nécessaire pour produire le même effet dans le même système. Cette notion n'est aujourd'hui guère utilisée que pour la radioprotection humaine du fait d'un manque de connaissances sur sa pertinence pour les espèces non humaines pour lesquelles les effets d'intérêt sont de type déterministe. Pour ce qui concerne l'efficacité biologique relative du tritium, il existe très peu de données pour les espèces non humaines et pour des critères d'effet pertinents au plan écologique.

Récemment, une compilation des valeurs de RBE publiées accompagnée d'indications sur leur pertinence pour des applications au cas d'espèces non humaines et pour des effets de nature déterministe a été diffusée dans le cadre du projet ERICA (ERICA, 2006). Pour ce qui concerne plus spécifiquement le tritium (HTO ou molécules marquées), il n'existait alors que six études in vivo (aboutissant à 7 valeurs de RBE) sur les effets du tritium sur la reproduction des vertébrés (mammifères et poissons). Les valeurs de RBE (Tab. 8.1) sont comprises entre 1 et 3,5.

Tableau 8.1 - Valeurs de RBE pour le tritium obtenues in vivo pour des espèces non-humaines et pour des critères d'effet associés à la reproduction

Groupe taxonomique	Espèce	Effet	Exposition	RBE	Rayonnement de référence	Référence
poisson	medaka	malformations embryonnaires et éclosion	HTO	1,0	Cs-137	Hyodo-Taguchi and Etoh, 1993
mammifère	souris	mutation cellulaire de cellules reproductrices mâles	³ H-thymidine	1,5	Cs-137	Balonov <i>et al.</i> , 1992a
mammifère	souris	mutation cellulaire de cellules reproductrices mâles	³ H-deoxycytine	1,8	Cs-137	Balonov <i>et al.</i> , 1992b
mammifère	souris	mort cellulaire de cellules reproductrices mâles	HTO	2,5	Cs-137	Balonov <i>et al.</i> , 1984
mammifère	souris	survie cellulaire d'oocytes	HTO	3,5	Cs-137	Satow <i>et al.</i> , 1989
mammifère	souris	survie cellulaire d'oocytes	HTO	1,6	Co-60	Dobson and Kwan, 1977
mammifère	souris	survie cellulaire d'oocytes	HTO	2,8	Co-60	Dobson and Kwan, 1977

Malgré le peu de données disponibles, Environment Canada (2000) recommande, dans sa revue de la « littérature » sur les effets de HTO chez les mammifères et les poissons, l'adoption d'un facteur de pondération égal à 3 pour le tritium (RWF ou Radiation Weighting Factor, facteur de pondération égal à la meilleure estimation du RBE pour toutes espèces, tous effets confondus). Environment Canada justifie cette valeur sur la base d'un inventaire des valeurs de RBE publiées allant de 1,7 à 3,8, en référence au rayonnement gamma du ⁶⁰Co ou du ¹³⁷Cs. Citant notamment Straume and Carsten (1993), l'ACRP (2002) conclut que, pour les espèces non humaines pour lesquelles les seuls critères d'effets interprétables sur le plan écologique avec les connaissances actuelles sont de type déterministe, une valeur raisonnable moyenne du facteur de pondération pour les rayonnements β serait de 2, avec une gamme de variation allant de 1 à 3 selon les effets examinés.

Dans son rapport de 1996, l'UNSCEAR (1996) recommande pour les rayonnements β , l'utilisation d'une valeur générique (toutes espèces, tous effets) égale à 2 pour les faibles énergies (<10 keV) et à 1 pour les énergies supérieures à 10 keV. Dans la révision à paraître en 2010, l'UNSCEAR recommande l'utilisation de valeurs spécifiques à l'organisme et à l'effet considéré lorsque la connaissance existe.

Dans le cadre des programmes européens FASSET puis ERICA (FASSET, 2003; FASSET, 2004; ERICA, 2006), une recommandation de même nature a été faite, préconisant une valeur de 3 pour les rayonnements β de faible énergie (au lieu de 2 proposée par l'UNSCEAR).

Les connaissances sont plus riches pour les effets de nature stochastique chez les mammifères. Diverses études ont démontré que les rayonnements β de faible énergie (<10 keV) ont une efficacité biologique relative (RBE) plus grande que celle des électrons d'énergie supérieure à 10 keV (Straume and Carsten, 1993; Moiseenko *et al.*, 2001; Waker *et al.*, 2001). Straume et Carsten (1993) ont analysé de manière critique 33 études sur l'efficacité biologique relative du tritium et ont calculé une valeur moyenne de 1,8 lorsque le rayonnement de référence est un rayonnement X, et de 2,3 lorsque le rayonnement de référence est constituée par les raies γ du ¹³⁷Cs ou du ⁶⁰Co. Moiseenko *et al.* (2001) ont proposé un facteur de pondération allant de 2 à 3 pour le tritium. Dans un récent rapport de la Health Protection Agency du Royaume-Uni (HPA, 2007) dédié au tritium, il est noté que les RBE s'étendent

généralement de 1 à 2 lorsque la référence est un rayonnement X, et de 2 à 3 lorsque la référence est un rayonnement γ . Little et Lambert (2007) dans leur synthèse dédiée aux valeurs de RBE obtenues lors d'études relatives aux effets d'une irradiation chronique par le tritium (HTO) de rongeurs (rats, souris in vivo) et de diverses lignées cellulaires de mammifères dont des lignées humaines in vitro, arrivent à des conclusions similaires. Les quatre études de carcinogénèse chez les mammifères in vivo donnent des valeurs de RBE de l'ordre de 2,5 (par référence à un rayonnement γ) et 1,2 (par référence à un rayonnement X). Cependant, l'utilisation de ces valeurs pour le domaine de l'induction de cancers à de faibles doses est déconseillée; elles ne représentent en effet pas les valeurs maximales des RBE en raison des schémas expérimentaux utilisés. Les autres études réalisées in vitro pour d'autres types d'effets décrivant la survie cellulaire, ont conduit les auteurs à la même mise en garde concernant l'utilisation de valeurs de l'ordre de 2,2 et de 1,2 pour les rayonnements β et X respectivement. Concernant l'influence du type de rayonnement de référence sur la valeur du RBE, Little et Lambert (2008) ont souligné qu'un rayonnement X (250kVp) est environ deux fois plus efficace par unité de dose délivrée que le rayonnement γ du ⁶⁰Co.

Pour conclure, la faible diversité des espèces étudiées et des stades de vie considérés, ainsi que des types d'effet déterministes explorés jusqu'à présent, souligne l'importance du besoin de connaissances plus complètes sur le sujet. Cependant, pour le cas particulier du tritium sous forme HTO, les études disponibles ont conduit à déterminer des valeurs de RBE inférieures à 3. L'application de ces facteurs de pondération lors du calcul d'une dose équivalente conduit à modifier celle-ci d'environ un ordre de grandeur (par rapport à un rayonnement gamma), ce qui est peu au regard des incertitudes plus importantes qui existent dans la chaîne de calcul dosimétrique (facteurs de transfert, période biologique) et dans la détermination des effets biologiques et écologiques en résultant.

8|3| Relation entre concentrations d'exposition et doses délivrées aux organismes

Afin de pouvoir convertir les concentrations d'activité des radionucléides dans les milieux de vie (exprimées en Bq/L ou Bq/kg) ou celles dans les organismes vivants (Bq/kg de tissu) en termes de doses ou de débits

de dose absorbée (Gy ou Gy par unité de temps), il convient de décrire les écosystèmes de manière simplifiée pour y représenter la distribution du radionucléide au sein des habitats et les voies correspondantes d'exposition des organismes vivants. Par exemple, trois compartiments abiotiques peuvent être distingués dans les écosystèmes aquatiques : les sédiments de fond, la colonne d'eau et l'air. Les organismes vivants sont représentés par des organismes dits de référence, choisis pour couvrir toute la gamme des variations possibles des expositions aux rayonnements ionisants (en termes de voies et d'intensités d'irradiation) et des radiosensibilités. Ces organismes de référence font l'objet de calculs dosimétriques à l'aide de géométries fixées par défaut, en représentant l'organisme par un ellipsoïde, associé à un scénario d'exposition prédéfini. L'IRSN a développé pour ce faire l'outil EDEN, applicable quelle que soit la géométrie de l'organisme et les modalités d'exposition définies (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2006). Ces méthodes de calcul reviennent à déterminer des coefficients de dose unitaires exprimés en Gy/unité de temps absorbé par l'organisme cible par Bq/masse ou par Bq/volume délivré par la source (milieu extérieur ou organisme). Il est possible d'utiliser des coefficients de dose dits agrégés $DCC_{i,o}$ exprimés en $\mu\text{Gy/h}$ par Bq/L ou kg du milieu d'exposition (eau, sédiment, air, sol) incluant les débits de dose résultant de chacune des voies d'exposition comme suit :

$$DCC_{i,o} = CR_{i,o} DCC_{i,o}^{int} + \sum_{medium} OF_o^{medium} DCC_{i,o}^{ext-medium}$$

Où :

OF_o^{medium} est le facteur d'occupation, i.e. la fraction de temps passée par l'organisme o dans un endroit spécifique de son habitat, constitué d'un ou plusieurs milieux d'intérêt (eau, sédiments, sol, air) ; pour chaque organisme, la somme des facteurs d'occupation est égale à un.

$DCC_{i,o}^{ext-medium}$ est le coefficient de conversion de dose pour l'exposition externe, défini comme le rapport entre le débit de dose et l'activité volumique/massique du radionucléide dans le milieu correspondant à l'habitat de l'organisme o ($\mu\text{Gy/h}$ par Bq/unité de milieu). Il est généralement supposé être nul pour les rayonnements alpha, compte tenu du faible pouvoir de pénétration des particules alpha dans l'eau, les sédiments et les matériaux biologiques.

$CR_{i,o} = \frac{C_{i,o}}{C_i^{medium}}$ sont les rapports de la concentration à l'équilibre pour un organisme de référence o (en L/kg poids frais) à la concentration de radionucléide dans le milieu d'exposition et à sa concentration dans l'organisme entier ($C_{i,o}$ en Bq/kg poids frais); ces rapports représentent les transferts agrégés de radionucléides du milieu d'exposition à l'organisme o, en incluant les voies trophiques (L/kg ou kg/kg exprimé sur la base du poids frais)

$DCC_{i,o}^{int}$ est le coefficient de conversion de dose pour l'exposition interne défini comme le rapport entre le débit de dose à l'organisme et l'activité massique du radionucléide i dans l'organisme o ($\mu\text{Gy/h}$ par Bq/kg poids frais)

Appliqués au tritium, les résultats obtenus pour les organismes de référence utilisés pour représenter les écosystèmes européens dans les méthodes d'évaluation du risque, sont reportés dans les tableaux 8.2 à 8.4.

Tableau 8.2 - Coefficients de dose (DCC) pour les organismes de référence représentatifs des écosystèmes terrestres européens. Ces coefficients tiennent compte de l'ensemble des voies d'irradiation (externe, interne) pour le tritium sous forme HTO dans le milieu d'exposition. Deux types de calculs ont été effectués pour le DCC interne : l'un par calcul Monte Carlo (MC), l'autre par dépôt ponctuel total.

Organisme	DCC interne		DCC externe	
	calcul MC	dépôt ponctuel	sol	air
	$\mu\text{Gy/h}$ par Bq/kg		$\mu\text{Gy/h}$ par Bq/kg	$\mu\text{Gy/h}$ par Bq/m ³
Lombric	2.89E-06	3.07E-06	2.07E-09	nd
Escargot	2.94E-06	3.07E-06	nd	1.36E-07
Abeille	2.87E-06	3.07E-06	nd	1.38E-06
Mésange	2.95E-06	3.07E-06	nd	4.75E-08
Lapin	2.95E-06	3.07E-06	nd	1.49E-08
Cerf	2.95E-06	3.07E-06	nd	1.10E-09
Loup	2.95E-06	3.07E-06	nd	2.73E-09
Fétuque	nd	4.11E-04	0.00E+00	0.00E+00
Pin	nd	3.65E-06	0.00E+00	0.00E+00

Tableau 8.3 - Coefficients de dose (DCC) pour les organismes de référence représentatifs des écosystèmes aquatiques continentaux européens. Ces coefficients prennent en compte l'ensemble des voies d'irradiation (externe, interne) pour le tritium sous forme HTO dans le milieu d'exposition. Deux types de calculs ont été effectués pour le DCC interne : l'un par calcul Monte Carlo (MC), l'autre par dépôt ponctuel total.

Organisme	DCC interne		DCC externe		
	calcul MC	dépôt ponctuel	sédiment	eau	air
	$\mu\text{Gy/h par Bq/kg}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/kg}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/kg}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/l}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/m}^3$
Algue (<i>Chl. reinhardtii</i>)	nd	3.29E-06	0.00E+00	0.00E+00	sans objet
Daphnie	2.66E-06	3.07E-06	nd	5.13E-08	sans objet
Chironome	2.49E-06	3.07E-06	9.92E-08	nd	sans objet
Anodonte	2.94E-06	3.07E-06	3.14E-10	nd	sans objet
Gardon	2.95E-06	3.07E-06	nd	2.52E-10	sans objet
Carpe commune	2.95E-06	3.07E-06	1.13E-16	2.95E-11	sans objet
Poisson-chat	3.28E-06	3.29E-06	1.34E-15	7.71E-11	sans objet
Perche	3.28E-06	3.29E-06	nd	2.37E-10	sans objet
Ephémère (sur l'eau)	2.85E-06	3.07E-06	nd	3.70E-09	5.33E-07
Ephémère (sur berge)	2.85E-06	3.07E-06	nd	sans objet	1.74E-06
Grenouille (dans l'eau)	2.94E-06	3.07E-06	4.25E-14	3.79E-10	sans objet
Grenouille (sur berge)	2.95E-06	3.07E-06	1.03E-13	sans objet	6.42E-08
Goéland	2.95E-06	3.07E-06	nd	6.88E-12	sans objet
Rat musqué	2.95E-06	3.07E-06	8.88E-16	sans objet	6.79E-09
Myriophylle	3.28E-06	3.29E-06	3.79E-12	1.80E-12	sans objet
Pin	nd	3.65E-06	0.00E+00	sans objet	0.00E+00

Tableau 8.4 - Coefficients de dose (DCC) pour les organismes de référence représentatifs des écosystèmes aquatiques marins européens. Ces coefficients prennent en compte l'ensemble des voies d'irradiation (externe, interne) pour le tritium sous forme HTO dans le milieu d'exposition. Deux types de calculs ont été effectués pour le DCC interne : l'un par calcul Monte Carlo (MC), l'autre par dépôt ponctuel total.

Organisme	DCC interne		DCC externe		
	calcul MC	dépôt ponctuel	sédiment	eau	air
	$\mu\text{Gy/h par Bq/kg}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/kg}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/kg}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/l}$	$\mu\text{Gy/h par Bq/m}^3$
Phytoplancton	nd	3.29E-06	0.00E+00	0.00E+00	sans objet
Fucus (touffe)	2.95E-06	3.07E-06	7.96E-18	1.14E-11	sans objet
Zostère (herbier)	2.95E-06	3.07E-06	3.53E-17	7.63E-12	sans objet
Zooplancton	2.87E-06	3.07E-06	nd	7.50E-09	sans objet
Arénicole	2.93E-06	3.07E-06	2.73E-13	1.14E-09	sans objet
Moule bleue	2.94E-06	3.07E-06	3.42E-14	3.98E-10	sans objet
Homard	2.95E-06	3.07E-06	7.08E-16	4.50E-11	sans objet
Plie	2.95E-06	3.07E-06	2.05E-14	1.67E-10	sans objet
Maquereau	2.95E-06	3.07E-06	nd	9.67E-11	sans objet
Canard (sur l'eau)	2.95E-06	3.07E-06	nd	2.23E-11	5.67E-09
Canard (sur berge)	2.95E-06	3.07E-06	2.83E-15	sans objet	1.60E-08
Phoque (dans l'eau)	2.95E-06	3.07E-06	nd	4.75E-12	sans objet
Phoque (sur berge)	2.95E-06	3.07E-06	2.18E-17	sans objet	1.20E-09

8|4| Relations entre le niveau d'exposition et la réponse des grandes fonctions biologiques des organismes exposés

En règle générale, l'étude et la compréhension des processus de toxicité dans les espèces vivantes passent par la construction de relations entre doses et réponses biologiques pour des types d'effets variés, interprétables quant à leurs conséquences sur la démographie de la population de l'espèce étudiée tels que par exemple la survie, la croissance, la reproduction. Sur la base d'un jeu de données déterminé selon un protocole expérimental adéquat établi en laboratoire ou in situ, une relation mathématique est recherchée pour décrire l'évolution de l'intensité de la réponse observée en fonction de l'augmentation de la dose ou du débit de dose d'exposition. Comme pour les substances chimiques, les connaissances ainsi acquises pour un radionucléide donné ou un stressor donné (tel que l'irradiation gamma), permettent de définir les critères écotoxiques suivants :

- NOEDR ou No Observed Effect Dose Rate ou débit de dose d'exposition le plus élevé pour lequel aucun effet statistiquement significatif n'est observé par rapport à la réponse biologique du groupe témoin non exposé ;
- LOEDR ou Lowest Observed Effect Dose Rate ou débit de dose d'exposition le plus faible pour lequel un effet statistiquement significatif est observé par rapport à la réponse biologique du groupe témoin non exposé ;
- EDR₁₀ (EDR₅₀) ou Effective Dose Rate 10% (50%) : débit de dose estimé à l'aide de la relation mathématique établie et donnant 10% (50%) d'effets par rapport au groupe témoin.

Dans la mesure du possible, l'analyse bibliographique présentée ci-après est fondée sur ces critères numériques.

8|4|1| Toxicité du tritium pour les organismes aquatiques

Les données sur la toxicité du tritium pour les organismes aquatiques ne concernent que des invertébrés ou vertébrés. Il n'existe aucune donnée relative à la toxicité du tritium pour les organismes végétaux. Les études d'effets rapportées dans la littérature portent sur des paramètres macroscopiques tels que la survie, la reproduction, les atteintes aux structures tissulaires et cellulaires, mais également sur les altérations de l'ADN. Plusieurs d'entre elles ont été réalisées en vue d'estimer une efficacité biologique relative, en comparant donc pour un même paramètre observé, l'intensité de la réponse induite par une dose délivrée par une exposition au tritium à celle obtenue pour la même dose d'un rayonnement de référence, en général gamma. Les doses radiologiques ont donc généralement été calculées par les auteurs ; dans le cas contraire, elles ont été estimées d'après la formule citée dans l'article de Hagger *et al.* (2005) :

$$D_p = 5,76.10^{-7} \times E_p \times C$$

Avec D_p , débit de dose en Gy/h ; E_p , énergie moyenne des électrons émis par le tritium (0,00569 MeV) ; C , activité volumique en tritium (Bq/mL) ; $5,76.10^{-7}$, un facteur de conversion.

Les concentrations d'effet ont été le plus souvent extrapolées à partir des données de l'article, hormis dans l'article de Hagger *et al.* (2005), pour lequel la LD₅₀ 48 h (Dose ou débit de dose létale pour 50% des individus après 48 heures d'exposition) a été déterminée par les auteurs.

8|4|1|1| Invertébrés aquatiques

Effets sur l'ADN - Différents paramètres de génotoxicité ont été étudiés pour la moule bleue exposée à une gamme d'activités volumiques d'eau tritiée, soit au stade œuf (Hagger *et al.* 2005), soit au stade adulte (Jha, Dogra *et al.* 2005). L'endommagement de l'ADN, évalué à l'aide de

profils de RAPD (Randomly Amplified Polymorphic DNA) et de l'essai des comètes, est significatif à partir d'un débit de dose de 0,3 mGy/j (13 µGy/h), quel que soit le stade étudié, et varie en fonction de la dose (Tab. 8.5). Cet endommagement a des conséquences cytogénétiques, à savoir des échanges de chromatides sœurs (SCE) et aberrations chromosomiques, de façon significative dès la dose de 0,03 mGy/j (1,3 µGy/h) (Hagger *et al.* 2005). L'augmentation des aberrations chromosomiques n'est pas fonction de la dose, ceci étant probablement lié à des phénomènes d'apoptose, et les principales aberrations observées sont desacentriques, générées par des ruptures de chromosomes ou de chromatides. L'augmentation des échanges de chromatides sœurs, dépendants de la phase S de la division cellulaire, suggère que le tritium pourrait interférer avec les processus de réplication ou inhiber les actions des enzymes associées à ces processus.

Ces altérations de l'ADN peuvent avoir des conséquences sur la survie (notamment pour les stades de vie précoces), la fécondité et le développement.

Effets sur la survie - La survie des invertébrés est affectée pour diverses espèces et à des stades de vie variés. Ainsi, une réduction de la durée de vie dépendant de la dose est observée pour des daphnies exposées pendant 5 générations (71 jours) à une gamme d'activités volumiques de tritium dans l'eau, avec un accroissement de la mortalité dès la première génération à partir d'une activité volumique de 5.10^8 Bq/L (soit un débit de dose estimé de 40 mGy/j) (Gudkov and Kipnis 1996). Hagger *et al.* (2005) ont observé 100 % de mortalité pour des œufs de moule bleue exposés pendant 23 heures après fertilisation (heure post fertilisation ou h.p.f.) à une activité volumique de 370 KBq/mL (soit un débit de dose estimé de 22 mGy/j). La LDR₅₀ à 72 h n'a pas pu être déterminée en raison de la forte mortalité, en revanche les auteurs indiquent une LDR₅₀ à 48 h, de 0,94 mGy/j. Knowles et Greenwood (1997) ont également observé une réduction de 18 % de la survie des œufs produits par des annélides exposés depuis le stade œuf jusqu'au stade adulte, à un débit de dose de 175 mGy/j.

Effets sur la reproduction - Les effets du tritium sur la reproduction ont été étudiés pour la daphnie, l'annélide et l'artémie. L'organisme le moins sensible paraît être l'artémie pour laquelle Higuchi *et al.* (1980) ont observé une réduction du nombre de larves, de la durée de la reproduction, du nombre de couvées et du nombre de larves par couvée, à partir de la première activité volumique étudiée (0,1 mCi/mL, le débit de dose calculé par les auteurs est de 270 mGy/j). D'après les graphes présentés, l'EDR₅₀ correspond à un débit de dose compris entre 270 et 1350 mGy/j (0,1 à 0,5 mCi/mL).

Lors du suivi de la fécondité de cinq générations de daphnies (Gudkov and Kipnis, 1996), une baisse du nombre de petits par ponte et du nombre total de pontes par daphnie, a été observée jusqu'à des valeurs nulles pour la dernière valeur étudiée (5.10^8 Bq/L, débit de dose estimé à 40 mGy/j). L'EDR₅₀ estimée sur la base de ces paramètres de fécondité (nombre de petits par ponte, nombre de pontes par daphnie et nombre total de petits produits par daphnie en moyenne pour les 5 générations) est de l'ordre de 10^6 Bq/L (ce qui correspond à 0,08 mGy/j).

Dans le cas de l'annélide (Réal *et al.*, 2004.), un seul débit de dose a été étudié (175 mGy/j), pour lequel une baisse de 30 % du nombre moyen de larves par vers a été constatée ainsi qu'une baisse de 15 % du nombre d'œufs par ver.

L'incidence du tritium sur la fécondité se traduit donc en termes de baisse du nombre d'œufs produits, ainsi qu'en baisse de leur viabilité, ce qui pourrait être lié à des dommages directs aux gamètes ou aux œufs. La cible privilégiée pour de tels types de dommages est l'ADN.

Effets sur le développement - De nombreuses études ont mis en évidence une augmentation du nombre d'anomalies durant l'embryogénèse. Ainsi, Gudkov and Kipnis (1996) ont observé la production d'œufs de différentes tailles et un développement irrégulier des œufs de la daphnie, conduisant à l'existence simultanée d'œufs et d'embryons dans la poche d'œufs, ainsi qu'à la dissolution des œufs. Le nombre maximal

d'anomalies de ce type a été observé pour la première activité volumique testée (500 Bq/L) (19,6 % en moyenne sur toutes les générations). A cette activité volumique, la proportion de développements anormaux s'accroît à chaque nouvelle génération, jusqu'à atteindre 37,5 % à la cinquième génération. La même tendance est observée pour l'activité volumique de 5.10^5 Bq/L mais avec des valeurs plus faibles (19,1 % en moyenne pour l'ensemble des générations). Cette diminution des effets peut s'expliquer par la mortalité plus élevée des individus les plus faibles et la survie des petits les plus viables. Les résultats rapportés au nombre d'anomalies de développement d'œufs (toutes générations confondues) permettent de déterminer une EDR₅₀ de l'ordre de 5.10^6 Bq/L (correspondant à un débit de dose de 0,4 mGy/j).

Hagger *et al.* (2005) ont également observé pour la moule une décroissance en fonction de la dose du pourcentage de larves normales (issues d'œufs exposés pendant 23 h p.f.) à 24, 48 et 72 h. De façon très marquée, à 72 h, seules quelques larves normales (18 % par rapport à 65 % dans le témoin) sont encore observées pour la première dose, soit un débit de dose de 0,04 mGy/j, tandis que pour les doses suivantes, plus aucune larve normale n'est observée.

Le plus petit débit de dose (LOEDR) entraînant des effets significatifs en termes de développement a été observé chez un invertébré marin, le pouce-pied, par Abbott et Mix (1979), avec un LOEDR de 2.10^{-4} mGy/j pour l'index de mue des larves « post-stade I », l'EDR₅₀ pouvant être estimée à 1 mGy/j. Les auteurs indiquent toutefois que cette valeur expérimentale pourrait être surestimée en raison de l'utilisation d'antibiotiques dans le milieu qui aurait pu sensibiliser les larves.

Effets histopathologiques - Des histopathologies de tissus stomacaux ont été observées par Cruz-Ramos et Carino (1989) pour des œufs d'escargot aquatique exposés de façon chronique à une gamme d'activités volumiques de tritium. Pour la plus forte activité volumique ($3,7.10^7$ Bq/L, correspondant à 3 mGy/j), on observe l'apparition de plis dans la paroi stomacale, de cellules hypertrophiées et une réduction de la taille de l'estomac, qui pourraient être dus à un retard de développement.

Effets sur l'ADN - La seule étude relative aux effets du tritium sur l'ADN de cellules de vertébrés aquatiques (Suyama *et al.*, 1981) a visé l'évaluation d'effets cytogénétiques dans des œufs de medaka exposés depuis leur fertilisation jusqu'au stade blastula (8 h). Une augmentation en fonction de la dose de la fréquence des mitoses aberrantes (i.e. fréquence des cellules contenant des ponts chromosomiques) a été observée à partir du deuxième débit de dose étudié (550 mGy/j). Ainsi, pour le débit de dose le plus élevée (11,1 Gy/j), la fréquence des cellules ayant un ou des ponts chromosomiques passe à 2,75 % alors qu'elle est de 0,56 % dans le témoin.

Effets sur la reproduction - La survie des cellules germinales a été étudiée chez des medakas exposés à une gamme d'activités volumiques de tritium, soit au stade adulte (30 jours), soit au stade embryonnaire (2 h post fertilisation jusqu'à l'éclosion entre 9 et 11 j).

Il apparaît que les cellules germinales (spermatogonies primaires Ib) des poissons exposés au stade adulte sont affectées par des concentrations de tritium relativement faibles, avec une baisse du nombre de spermatogonies primaires de 62 % pour une exposition à un débit de dose de 20 mGy/j (Hyodo-Taguchi and Egami, 1977). Une diminution du poids des testicules de 40 % a également été observée à partir de 100 mGy/j.

Pour les poissons exposés au stade embryonnaire, la sensibilité des cellules germinales est plus faible, avec une baisse de 50 % du nombre de ces cellules observée pour les larves fraîchement écloses pour 195 mGy/j (Etoh and Hyodo-Taguchi, 1983). Le chorion des œufs de poissons medakas pourrait limiter l'entrée du tritium dans l'organisme et expliquer la sensibilité plus faible à ce stade pourtant plus précoce. Il faut souligner que les auteurs ont estimé le facteur de concentration du tritium par les œufs (0,60), mais ne l'ont pas mesuré, il est donc

Tableau 8.5 - Toxicité du tritium chez les invertébrés aquatiques. ECx et LOEDR donnés en mGy/j (μ Gy/h)

^a : débit de dose calculé selon l'équation 1

Référence	Espèce	Effet étudié	Critère d'effet	Débit de dose mGy/j (μ Gy/h)
Invertébrés d'eau douce				
(Gudkov et Kipnis, 1996)	Daphnia magna (daphnie)	Traits d'histoire de vie sur 5 générations (71 j)	EDR ₅₀ paramètres de la reproduction	^a 0,08 (3)
			EDR ₅₀ anomalies du développement	^a 0,4 (17)
(Cruz-Ramos and Carino, 1989)	Pila luzonica (escargot)	Histopathologies	LOEDR	3 (12.5)
Invertébrés marins				
(Abbott and Mix, 1979)	Pollicipes polymerus (pouce-pied)	Effets sur le développement	EDR ₅₀ index de mue des larves post-stade I	^a 1 (42)
(Hagger <i>et al.</i> , 2005)	Mytilus edulis (moule bleue)	Effets sur l'ADN, sur le développement et la survie	LOEDR effets sur l'ADN (aberrations chromosomiques)	0,03 (1,25)
			LOEDR anomalies développement des larves à 72 h	0,04 (1,7)
			LDR ₅₀ à 48 h	0,9 (38)
(Jha <i>et al.</i> , 2005)	Mytilus edulis (moule bleue)	Effets sur l'ADN hématocytaire (stade adulte)	LOEDR	0,3 (1,2)
(Réal <i>et al.</i> , 2004.)	Ophryotrocha diadema (annélide)	Performance reproductive Survie	EDR ₂₀ survie	175 (7292)
			LOEDR survie	175
			EDR ₃₀ reproduction	175
			LOEDR reproduction	175
(Higuchi <i>et al.</i> , 1980)	Artemia salina (artémie)	Fécondité	LOEDR EDR ₅₀	270 (11250) Entre 270 et 1350 (52250)

difficile d'avoir une idée de la précision de cette dose interne. A partir du deuxième débit de dose étudié (340 mGy/j), le nombre de cellules germinales baisse à 30 cellules par larve fraîchement éclos (par rapport à 130 dans les témoins) et ne diminue plus lorsque le débit de dose augmente. Les auteurs en ont conclu qu'il y aurait deux populations de cellules germinales, l'une radiosensible, l'autre relativement radio-résistante, qui pourraient correspondre à chacun des sexes.

Les incidences de ces événements sur la fécondité ont été étudiées par Hyodo-Taguchi et Etoh (1986), qui ont réalisé des appariements croisés de mâles et femelles exposés ou non. Les conditions d'irradiation étaient celles décrites ci-dessus (embryons exposés depuis la fertilisation jusqu'à l'éclosion).

Dans le cas des femelles exposées appariées à des mâles non exposés, une réduction en fonction de la dose de la fécondité, en termes de fréquence de ponte et de fréquence de ponte normale (i.e. avec des œufs fertiles) a été observée. Aucune ponte n'a été observée au débit de dose le plus élevé (3,4 Gy/j). L'EDR₅₀ se situe entre 340 et 850 mGy/j. Dans le cas de mâles exposés appariés à des femelles non exposées, l'EDR₅₀ correspondant à la fréquence de pontes normales est du même ordre de grandeur que celle observée pour les femelles exposées. Il est intéressant de noter que la fréquence de ponte diminue également légèrement lorsque seuls les mâles ont été exposés, ce qui suggère d'éventuels effets comportementaux sur les mâles.

La capacité reproductive (i.e. nombre d'œufs fertilisés produits par jour et par poisson) diminue dès le premier débit de dose étudié (85 mGy/j), quel que soit le sexe exposé. L'EDR₅₀ correspondante est de 340 mGy/j pour les paires dont la femelle a été exposée et 500 mGy/j dans le cas de mâles exposés.

Des résultats drastiquement différents en fonction du sexe de la population exposée ont été observés sur le taux d'éclosion des œufs : tandis qu'aucun changement significatif n'est observé pour les femelles, le taux d'éclosion diminue en fonction de la dose lorsque les mâles ont été exposés, à partir de 340 mGy/j. L'EDR₅₀ correspondante se situe entre 850 et 1700 mGy/j. Cette différence pourrait provenir de capacités de régénération des cellules ou de réparation des dommages à l'ADN plus faibles chez les mâles que chez les femelles. Le cycle de maturation des spermatocytes et spermatides étant de 60 jours, il est vraisemblable que tout le tritium n'ai pas été éliminé, particulièrement le tritium organique, et donc qu'il se redistribue et continue à exercer des dommages.

Effets sur la réponse immunitaire - Le débit de dose donnant l'effet le plus faible observé concerne les effets sur la réponse immunitaire chez la truite arc-en-ciel. Des juvéniles de truites préalablement exposés au stade embryonnaire pendant 20 jours à différentes gammes d'activités volumiques de HTO, ont reçu une injection d'antigènes (cellules de *Flexibacter columnaris* tuées par la chaleur) ; des tests d'agglutination ont ensuite été réalisés pour tester leur réponse immunitaire. 9 et 11 semaines après la vaccination, une diminution de 50 % des niveaux d'agglutinine a été observée pour les poissons irradiés aux débits de dose les plus élevés (2 et 20 mGy/j).

Tableau 8.6 - Toxicité du tritium pour les vertébrés aquatiques. EDRx et LOEDR donnés en mGy/j (μGy/h)

Référence	Espèce	Effet étudié	Critère d'effet	Débit de dose d'effet
(Strand and Larsson, 2001)	<i>Salmo gairdeni</i> (truite arc-en-ciel)	Réponse immunitaire chez des juvéniles exposés au stade d'œufs pendant 20 j	EDR ₅₀ 9 semaines après l'injection d'antigènes EDR ₅₀ 11 semaines après l'injection d'antigènes	20 (833) 2 (83)
(Hyodo-Taguchi and Egami, 1977)	<i>Oryzias latipes</i> (medaka)	Poids des testicules et survie des spermatogonies primaires chez les adultes	EDR ₄₀ poids des testicules après 30 j d'exposition EDR ₆₀ nombre spermatogonies primaires Ib	100 (4167) 20 (833)
(Etoh and Hyodo-Taguchi, 1983)	<i>Oryzias latipes</i> (medaka)	Survie des cellules germinales pour des embryons exposés de 2 heures post fertilisation à 10 jours	EDR ₅₀ survie des cellules germinales/larve (2 sexes confondus)	195 (8125)
(Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986)	<i>Mytilus edulis</i> (moule bleue)	Fécondité et fertilité (croisées) pour des adultes exposés au stade d'embryons	LOEDR capacité reproductive (femelles irradiées, mâles témoin) EDR ₅₀ capacité reproductive (femelles irradiées, mâles témoin) NOEDR taux d'éclosion LOEDR capacité reproductive (mâles irradiés, femelles témoin) EDR ₅₀ capacité reproductive (mâles irradiés, femelles témoin) LOEDR taux d'éclosion (mâles irradiés, femelles témoin) EDR ₅₀ taux d'éclosion (mâles irradiés, femelles témoin)	85 (3542) 340 (14167) 3400 (141667) 85 (3542) 500 (20833) 340 (14167) 850 à 1700
(Suyama et al., 1981)	Medaka	Effets cytogénétiques	LOEDR fréquence de mitoses aberrantes	550 (20833)

Les données relatives aux organismes terrestres proviennent essentiellement d'études menées sur des mammifères pour évaluer les effets sur l'homme. Les effets biologiques du tritium ont été étudiés sur des lignées cellulaires exposées in vitro ou sur des animaux exposés in vivo dans des conditions maîtrisées. La plupart de ces études concernent des expositions aiguës à fortes doses. L'IRSN n'a pas identifié de données exploitables sur l'écotoxicité du tritium pour les plantes terrestres.

Effets cancérogènes - Les études de cancérogénèse réalisées sur des rongeurs (Gragtmans *et al.*, 1984 ; Johnson *et al.*, 1995 ; Seyama *et al.*, 1991 et Revina *et al.*, 1984), concernant des injections uniques de tritium délivrant des doses allant de 0,5 Gy à 25 Gy, ce qui est très loin d'un contexte d'exposition chronique à faible débit de dose. De plus, ces rongeurs sont caractérisés par un taux très élevé d'incidence spontanée de cancers (e.g. dans l'étude de Gragtmans *et al.* (1984), 63 % des témoins ont développé un cancer), ce qui rend leurs résultats discutables.

Effets sur l'ADN - D'autres études sont relatives à des effets de type génétique, comme le suivi des aberrations chromosomiques et de l'induction de micronoyaux dans des cellules de mammifères.

Des aberrations chromosomiques ont ainsi été observées sur des lymphocytes humains exposés à des doses allant de 0,28 Gy à 2,5 Gy (Bocian *et al.*, 1977).

Kozlowski *et al.* (2001) ont comparé l'induction d'aberrations chromosomiques stables dans des cellules de la moelle épinière de femelles de souris et de leur progéniture âgée de 28 jours, à partir d'une contamination par de l'eau tritiée ou par de la nourriture contaminée par du tritium. Des dommages similaires ont été observés chez les petits et leurs mères pour les deux formes de contamination, à partir d'une dose estimée à 0,6 Gy (débit de dose 30 mGy/j).

Effets sur la reproduction et sur le développement - Des études ont été réalisées au sujet des effets du tritium sur les paramètres de reproduction, depuis la survie des cellules germinales jusqu'au développement des petits sur deux générations. Pour les cellules germinales, les ovocytes primaires constituent le stade le plus radiosensible des ovocytes chez les rongeurs. Ainsi, pour des rats exposés in utero jusqu'à leur naissance par l'injection intraveineuse journalière de thymidine tritiée chez la mère (débit de dose estimé à 2500 µGy/h), une baisse drastique du nombre d'ovocytes primaires a été observée, les quelques ovocytes subsistant étant soit de type III, soit des follicules (Haas and Flidner, 1971). Dobson et Kwan (Dobson and Kwan, 1977) ont également montré que la survie des stades primaires d'ovocytes est affectée chez des souris exposées à de l'eau tritiée in utero puis par le lait maternel jusqu'à un âge de 14 jours après leur naissance, de façon significative dès 40 µGy/h, et avec une LDR₅₀ correspondante de 60 µGy/h. Les dommages engendrés in utero semblent représenter une part importante de ces effets puisque des souris traitées par une injection de HTO intra-péritonéale unique à l'âge de 14 jours présentent des dommages moindres aux ovocytes 14 jours après l'injection (durée nécessaire à l'élimination du tritium),

avec une LDR₅₀ de 194 µGy/h (Satow *et al.*, 1989). Une telle sensibilité des stades primaires d'ovocytes a également été observée par Pietrzak-Flis et Wasilewska-Gomulka (1984) chez des rats exposés depuis leur conception jusqu'au stade juvénile (âge de 21 jours) et au stade de jeunes adultes (âge de 71 jours), avec un effet plus marqué chez les rats exposés à du tritium incorporé à la nourriture, bien que le débit de dose induit soit plus faible (4,8 mGy/j pour le tritium organique par rapport à 7,2 et 14,7 mGy/j pour HTO). Les individus exposés jusqu'au stade de jeunes adultes présentent des baisses du nombre d'ovocytes similaires à celles constatées chez les individus exposés jusqu'au stade juvénile, ce qui indique une meilleure résistance des ovocytes aux effets du tritium.

Laskey *et al.* (1973) ont également examiné pour des rats Sprague-Dawley, les effets de tritium ajouté à l'eau de boisson depuis la conception jusqu'à la génération F2, sur une gamme de débits de dose allant de 1,25 µGy/h à 1250 µGy/h. Pour la génération F1, une baisse significative (30 %) du poids des testicules a été mise en évidence pour la dose la plus forte sans qu'aucun effet significatif ne soit observé sur la taille de la portée, la croissance des juvéniles ou la capacité reproductive. En revanche, les conséquences sur la génération F2 sont évidentes puisqu'une diminution de la taille de la portée est observée pour la dose la plus forte, ainsi que du poids des gonades mâles et femelles pour les deux doses les plus élevées. Une augmentation du taux de résorption embryonnaire est également observée pour la dose la plus forte. Le poids du cerveau des juvéniles de la génération F2 est par ailleurs significativement plus faible à partir d'un débit de dose de 12,5 µGy/h. L'ensemble de ces paramètres varie de façon plus fréquente lorsque les organismes sont exposés depuis la conception, avec des conséquences à l'âge adulte en termes de baisse des taux de norépinéphrine et de dopamine et d'augmentation des taux d'hormone de stimulation folliculaire (FSH) (Laskey and Bursian, 1976).

L'étude de Sun *et al.* (1997) sur les conséquences neurologiques observées chez des souris âgées de 8 semaines, exposées in utero à du tritium (injection d'eau tritiée au 13ème jour de gestation), confirme la diminution du poids du cerveau à partir d'un débit de dose de 50 mGy/j (2080 µGy/h). Cette diminution s'accompagne d'une baisse de l'épaisseur du cortex somatosensoriel, à partir de ce même débit de dose, ainsi que d'une diminution de la densité des cellules pyramidales à partir de 25 mGy/j. Le poids total des souris est également plus faible à partir de 100 mGy/j. Ces atteintes neuronales ont des conséquences sur le comportement des souris, étudié à l'aide d'une batterie de tests incluant l'étude de l'activité spontanée (test en champ ouvert et planche à trous), de la coordination motrice complexe et de la force musculaire (test de nage en labyrinthe) ainsi que d'apprentissage et mémorisation (tests d'acquisition d'évitement et tests en labyrinthe) (Wang and Zhou, 1995). Les résultats de ces tests montrent que l'activité des souris exposées est affectée, avec une excitation chez les individus les plus jeunes, évoluant ensuite vers une hypoactivité/dépression chez les adultes. Des difficultés d'apprentissage et de mémorisation sont observées à partir d'un débit de dose de 14 mGy/j.

Tableau 8.7 - Toxicité du tritium chez les vertébrés terrestres. EDRx et LOEDR donnés en mGy/lj (μGy/h)

Référence	Espèce	Effet étudié	Critère d'effet	Débit de dose d'effet
(Strand and Larsson, 2001)	Souris Swiss-Webster	Survie des ovocytes primaires chez les descendants exposés à HTO in utero et pendant 14 jours après la naissance	EDR ₅₀ 14 jours après la naissance LOEDR 14 jours après la naissance	1,36 (57) 0,9 (38)
(Hyodo-Taguchi and Egami, 1977)	Souris souche ICR	Survie des ovocytes primaires chez les descendants exposés à HTO par une seule injection i.p.	EDR ₅₀ 14 jours après l'injection i.p. chez souris âgées de 14 jours lors de l'injection	4,6 (194)
(Etoh and Hyodo-Taguchi, 1983)	Rats Wistar	Survie des ovocytes chez les femelles exposées depuis la conception jusqu'à l'âge adulte	EDR ₅₀ (nombre total ovocytes) chez les jeunes adultes exposés à HTO (22 jours exposition in utero et 71 jours post-naissance)	14 (583)
(Laskey et al., 1973) (Laskley and Bursian, 1976)	Rats Sprague-Dawley	Effets traits d'histoire de vie sur 2 générations	Génération F1 : 30 % baisse poids testicules Génération F2 : LOEDR réduction du poids du cerveau LOEDR réduction du poids total LOEDR réduction taille portée LOEDR augmentation résorption embryonnaire	30 (1250) 0,3 (12,5) 3 (125) 30 (1250) 30 (1250)
(Sun et al., 1997)	Souris souche C57BL/6J	Effets d'une exposition prénatale sur le cerveau de souris âgées de 8 semaines	LOEDR réduction poids total LOEDR réduction poids cerveau LOEDR épaisseur cortex somatosensoriel LOEDR densité cellules pyramidales	100 (4170) 50 (2080) 50 (2080) 25 (1040)
(Wang and Zhou, 1994)	Souris souche C57BL/6J	Effets d'une exposition prénatale sur le comportement	LOEDR tous tests de comportement (champ ouvert, planche à trous, labyrinthes, évitement)	14 (580)

8|4|3| Synthèse sur l'écotoxicité du tritium

Points essentiels sur les mécanismes d'altération de l'ADN par le tritium et les spécificités par rapport aux rayonnements gamma. Au même titre que d'autres radionucléides émetteurs de rayonnements ionisants quelle que soit leur nature, le tritium provoque divers types de lésions de l'ADN (notamment des cassures double brin (CDBs)) à l'origine directe ou indirecte de conséquences biologiques diverses (cancers, effets génétiques, anomalies du développement et effets sur la reproduction, effets sur la réponse immunitaire). Sur la base des études in vitro conduites par Saintigny *et al.* (2008) sur des lignées cellulaires de mammifères, les CDBs sont principalement réparées par le processus de recombinaison homologue qui est essentiel au maintien de la stabilité génomique mais qui peut conduire en cas d'excès à des instabilités chromosomiques. Dans le cas du tritium, contrairement à ce qui se passe pour les rayonnements gamma, les réarrangements génomiques sont fortement induits à partir des doses de l'ordre de 0,5 Gy/noyau, doses pour lesquelles aucune cytotoxicité n'est observée. Cette absence de toxicité cellulaire a pour conséquence un surcroît de danger pour les organismes multicellulaires puisque la survie des cellules porteuses de réarrangements génomiques accroît les risques d'induction et de transmission transgénérationnelle d'altérations génétiques.

Pour ce qui concerne l'efficacité biologique relative du tritium, il n'existe que six études in vivo (7 valeurs de RBE) sur les effets du tritium sur la reproduction des vertébrés (mammifères et poissons). Les valeurs sont comprises entre 1,5 et 3.

La faible diversité des espèces étudiées et de leurs stades de vie considérés, ainsi que des types d'effet déterministes explorés jusqu'à présent, souligne l'importance du besoin de plus de connaissances. Cependant, dans le cas particulier du tritium sous forme HTO, l'ensemble des études disponibles concernant les effets déterministes et les effets stochastiques ont conduit à des RBE inférieurs à 3. L'application d'une telle valeur lors du calcul de la dose équivalente conduit à modifier cette dernière d'environ un ordre de grandeur (par rapport à un rayonnement gamma), ce qui est peu au regard des incertitudes plus importantes existant dans la chaîne de calcul dosimétrique (facteurs de transfert, période biologique) et sur la caractérisation de l'effet biologique et écologique en résultant. Plus que des données sur le RBE en tant que tel, ce sont des connaissances sur les mécanismes d'action du tritium sur les organismes vivants qui font défaut actuellement.

Points essentiels sur l'écotoxicité chronique du tritium. Les données disponibles sur la toxicité chronique du tritium pour les organismes aquatiques et terrestres ne concernent que des invertébrés ou des verté-

8|4|4| Analyse de la toxicité du tritium à partir de l'établissement de relations dose-effet pour les espèces

brés. Il n'existe aucune donnée relative à la toxicité du tritium pour les modèles végétaux. Les travaux récents de Hagger *et al.* (2005) et Jha *et al.* (2005) sur un mollusque marin (*Mytilus edulis*) au stade œuf et au stade adulte, ont mis en évidence la grande sensibilité de cette espèce d'invertébrés (par rapport aux vertébrés) et le fait que les dommages à l'ADN, fonction du débit de dose à partir de 13 $\mu\text{Gy/h}$, ont des conséquences cytogénétiques indépendantes de la dose, à savoir des échanges de chromatides sœurs (SCE) et des aberrations chromosomiques, de façon significative dès le débit de dose de 0,03 mGy/j (1,3 $\mu\text{Gy/h}$). L'augmentation des échanges de chromatides sœurs, qui dépendent de la phase S de la division cellulaire, suggère que le tritium pourrait intervenir dans les processus de réplication ou inhiber les actions des enzymes associées à ces processus. Quelle que soit l'espèce animale, ces altérations de l'ADN peuvent avoir des conséquences sur la survie (notamment pour les stades de vie précoces), la fécondité et le développement. Les travaux sur la moule bleue révèlent une grande sensibilité de cette espèce avec par exemple une LDR₅₀ des œufs après 48 h d'exposition à HTO, de seulement 0,94 mGy/j (38 $\mu\text{Gy/h}$). Pour la daphnie (travaux de Gudkov et Kipnis, 1996), l'EDR₅₀ estimée pour les paramètres de fécondité (nombre de petits par ponte, nombre de pontes par daphnie et nombre total de petits produits par daphnie en moyenne sur 5 générations) est de l'ordre de 0,08 mGy/j, soit 3 $\mu\text{Gy/h}$.

Globalement, la « littérature » montre que l'effet du tritium sur la fécondité des invertébrés et des vertébrés est une baisse du nombre d'œufs produits, ainsi qu'une baisse de leur viabilité, ce qui pourrait être lié à des dommages directs aux gamètes ou aux œufs. Pour les poissons exposés au stade embryonnaire, le chorion des œufs pourrait limiter l'entrée de tritium et expliquer la sensibilité plus faible à ce stade pourtant plus précoce. Sur la base des études publiées sur l'augmentation du nombre d'anomalies durant l'embryogénèse, ce sont également les invertébrés aquatiques qui apparaissent bien plus sensibles que les vertébrés. Des valeurs très faibles sont rapportées dans la « littérature » comme par exemple le plus petit débit de dose ; entraînant un effet significatif en termes de développement des larves chez le pouce-pied par Abbott et Mix (1979) (LOEDR de 0,0002 mGy/j), ou encore une LOEDR de 1,7 $\mu\text{Gy/h}$ relative à la normalité du développement des larves âgées de 48 heures de *Mytilus edulis* après 23 heures d'exposition à HTO. En conclusion d'une étude sur cinq générations de *Daphnia magna* exposées de manière chronique à HTO, Gudkov et Kipnis (1996) soulignent une aggravation des anomalies de développement des larves s'aggravant au fil des générations, statistiquement significative à partir de 3 $\mu\text{Gy/h}$.

Les questions à approfondir. Certaines valeurs de type LOEDR ou EDR₁₀ estimées pour le tritium (HTO) et les espèces de mollusque et crustacé qui ont fait l'objet d'études d'écotoxicité sont significativement plus faibles que la valeur de 10 $\mu\text{Gy/h}$ habituellement considérée comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma. Ces données sont toutes relatives à des effets observés sur trois espèces d'invertébrés aquatiques (*Daphnia magna*, *Mytilus edulis* et *Pollicipes polymerus*). Pour ces données d'écotoxicité du tritium comparables entre elles (24 données d'EDR₁₀), et contrairement aux données relatives à la toxicité des rayonnements gamma par irradiation externe, ce ne sont pas les vertébrés qui apparaissent les plus sensibles. Il conviendrait donc d'une part de confirmer l'hypersensibilité des invertébrés aquatiques en élargissant la diversité des espèces testées et le cas échéant, de rechercher les mécanismes spécifiques qui pourraient expliquer ce phénomène. Les effets sur le développement observés par Gudkov et Kipnis (1996) pour *Daphnia magna* qui s'aggravent au fil des générations, en fonction de la dose, avec un plafond, ainsi que les résultats de Saintigny *et al.* (2008) qui concluent, pour une gamme de doses faibles dues au tritium, à l'absence de toxicité cellulaire et donc à la survie des cellules porteuses de réarrangements génomiques, montrent l'intérêt de poursuivre des travaux de recherche pour mieux comprendre et quantifier les risques d'induction et de transmission transgénérationnelle d'altérations génétiques.

L'ensemble des données sur les effets du tritium sur les organismes vivants a fait l'objet d'une analyse visant à structurer mathématiquement les relations entre le débit de dose et les effets observés pour chaque jeu de données. La méthode utilisée est celle qui a été conçue et appliquée dans le cadre des projets européens ERICA et PROTECT. Elle a consisté à établir des relations dose-effet à partir des données d'écotoxicité relatives aux situations d'exposition externe à des émetteurs gamma pour diverses espèces et pour divers effets (morbidité, mortalité, reproduction).

Les informations contenues dans la base de données FREDERICA¹³ ont réorganisées pour pouvoir appliquer un modèle dose-réponse de type logistique à chaque jeu de données en respectant rigoureusement des règles garantissant la qualité statistique des modélisations obtenues (pour plus de détails, Garnier-Laplace *et al.*, 2006 ; 2008). Ces modèles ont ensuite été utilisés pour estimer les valeurs de toxicité critique correspondantes EDR₁₀ (débits de dose induisant 10 % de l'effet en cas d'exposition chronique, assimilables à des NOEDR). Le tableau 8.8 dresse la liste des données d'écotoxicité utilisées dans le cadre du projet PROTECT pour établir la loi de distribution de sensibilité des espèces à l'exposition externe aux rayonnements gamma (PROTECT, 2008).

Le tableau 8.8 récapitule les valeurs d'EDR₁₀ et leurs intervalles de confiance à 95 %, obtenus pour le tritium, sur la base des références bibliographiques citées aux chapitres précédents. Seules 5 espèces sont représentées : deux nouvelles espèces pour lesquelles il n'existe pas de données d'effets observés lors d'irradiations chroniques par des émetteurs gamma (*Crassostrea gigas* et *Mytilus edulis*), et deux espèces déjà répertoriées dans le jeu de données sélectionné dans le cadre du projet PROTECT (*Rattus norvegicus*, *Oryzias latipes*) et présentant chacune au moins une valeur d'EDR₁₀—reproduction pour l'exposition chronique à HTO plus faible que la valeur retenue par PROTECT pour les situations d'exposition externe chronique à des émetteurs gamma : l'EDR₁₀ pour HTO est plus faible d'un facteur 1000 pour le poisson *Oryzias latipes*, et d'un facteur 1,3 pour le rongeur. La différence notable des EDR₁₀ chez le poisson s'explique au moins en partie par le critère d'effet observé qui concerne la survie des juvéniles à 1 mois (stade du cycle de vie parmi les plus sensibles) pour l'exposition au tritium contre l'index gonado-somatique pour les individus adultes pour l'exposition aux rayonnements gamma. Pour le rongeur (*Rattus norvegicus*), les critères d'effet observés sont de même nature et donc de sensibilité plus proche : nombre d'oocytes chez les adultes pour l'exposition au tritium et nombre de spermatogonies pour l'irradiation externe à des émetteurs gamma. Comme pour l'efficacité biologique relative du tritium chez les espèces non humaines, le trop faible nombre de données disponibles pour ce radionucléide ne permet pas de situer de manière robuste l'intensité et la qualité des effets observés pour un même débit de dose délivré pour une exposition chronique au tritium par rapport à celles observées et mieux connues lors d'une irradiation externe chronique à des émetteurs gamma.

¹³ FREDERICA rassemble les connaissances sur les effets des rayonnements ionisants sur les organismes non humains. Cette base de données contient plus de 25000 entrées ou couples de points (dose ou débit de dose, effet) accompagnés d'informations sur leurs conditions d'obtention (référence bibliographique, type d'exposition, type de rayonnement, émetteurs, acquisition en laboratoire ou in situ, espèce, durée d'exposition, dosimétrie, etc.).

Tableau 8.8 - Valeurs des débits de dose entraînant 10% d'effet (EDR_{10} en $\mu\text{Gy/h}$) et erreur d'estimation associée pour les espèces non humaines exposées de manière chronique aux rayonnements gamma (selon les travaux de PROTECT, 2008). Ce tableau ne présente que les valeurs les plus basses obtenues pour une espèce pour des effets pertinents sur le plan de la dynamique des populations (sélection PROTECT 2008).

Référence	Groupe taxonomique	Niveau trophique	Espèce	Catégorie d'effet	EDR_{10} ($\mu\text{Gy/h}$)	Erreur d'estimation
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1993	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	36	123
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1993	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Morbidité	33250	3147
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	2831	2591
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<u>Oryzias latipes</u>	Reproduction	5225	3591
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	8389	1804
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	6917	4322
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	5812	1548
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	7060	4004
Etoh and Hyodo-Taguchi, 1983	Poisson	Vertébré	Oryzias latipes	Reproduction	764	291
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	Rattus norvegicus	Reproduction	18	46
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	Rattus norvegicus	Reproduction	27	36
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	Rattus norvegicus	Reproduction	39	59
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	Rattus norvegicus	Reproduction	25	45
Laskey et al., 1973	Mammifère	Vertébré	Rattus norvegicus	Reproduction	1174	579
Laskey et al., 1973	Mammifère	Vertébré	Rattus norvegicus	Reproduction	1229	359
Nelson, 1971	Mollusque	Invertébré	Crassostrea gigas	Morbidité	117	0.13
Hagger et al., 2005	Mollusque	Invertébré	Mytilus edulis	Morbidité	1,28	1,47
Hagger et al., 2005	Mollusque	Invertébré	Mytilus edulis	Morbidité	0,009	0,052
Hagger et al., 2005	Mollusque	Invertébré	Mytilus edulis	Morbidité	0,701	0,060
Hagger et al., 2005	Mollusque	Invertébré	Mytilus edulis	Morbidité	0,004	0,013
Jha et al., 2005	Mollusque	Invertébré	Mytilus edulis	Morbidité	22	16
Gudkov and Kipnis, 1996	Crustacé	Invertébré	Mytilus edulis	Reproduction	0,29	1,62
Gudkov and Kipnis, 1996	Crustacé	Invertébré	Mytilus edulis	Reproduction	0,39	0,91
Gudkov and Kipnis, 1996	Crustacé	Invertébré	Daphnia magna	Morbidité	1,72	4,21

8|5| Conséquences pour les écosystèmes : valeur guide sans effet

L'une des recommandations formulées dans le cadre des projets ERICA puis PROTECT est de déterminer la valeur du débit de dose sans effet pour un écosystème par application de la méthode d'extrapolation statistique dite SSD (Species Sensitivity Distribution) (Garnier-Laplace *et al.*, 2006). Cette méthode consiste à décrire la distribution statistique de la sensibilité au stressor (e.g. rayonnement gamma externe) pour les espèces ayant fait l'objet de tests d'écotoxicité. Le jeu de données obtenu est considéré comme un échantillon représentatif de la population (au sens statistique du terme) et est visualisé sous la forme d'une courbe donnant la fréquence cumulée exprimée en fonction du débit de dose

d'exposition. Après avoir choisi un seuil de protection de (100 p) % d'espèces (en général 95% des espèces), le débit de dose protecteur seuil est assimilé à la valeur d'exposition lue sur l'axe des abscisses, correspondant à p % (soit 5%) d'espèces affectées. Dénommée HDR_p (Hazardous Dose Rate p %), il peut servir de base au choix d'une valeur sans effet : lorsqu'un seuil de protection a été décidé (par exemple, protection de 95 % des espèces), tout débit de dose d'exposition supérieur à la valeur de HDR_p peut être identifié comme présentant un risque pour l'écosystème. L'application de cette méthode a permis de déterminer, de manière tracée et similaire à celle appliquée pour les substances chimiques, un critère seuil de protection de 95 % des espèces d'un écosystème pour une exposition chronique par irradiation externe aux émetteurs gamma de 10 $\mu\text{Gy/h}$. Cette valeur a pu être comparée aux valeurs représentatives des débits de dose délivrés aux

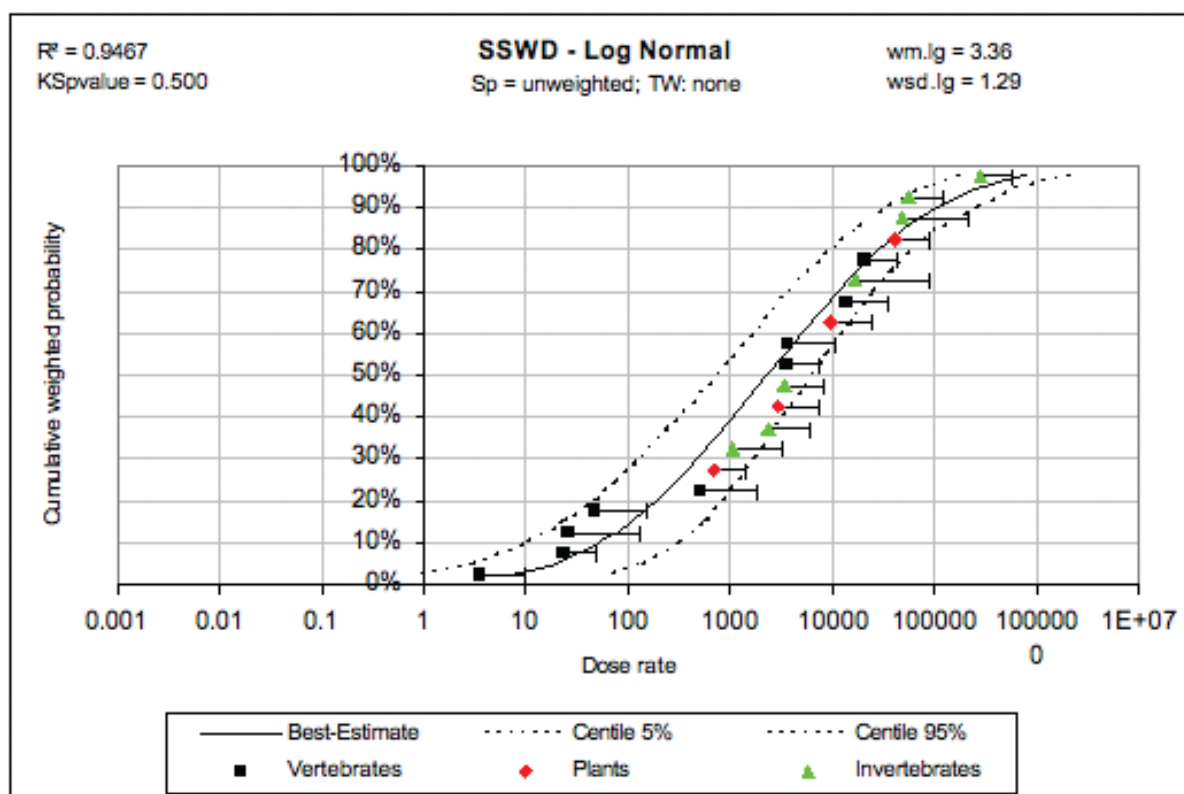
diverses espèces du fait du bruit de fond naturel ; ces débits de dose varient de 0,01 à 6 $\mu\text{Gy/h}$ selon les écosystèmes et les espèces exposées (Gómez-Ros *et al.* 2004). L'application de cette méthode à l'ensemble des conditions d'exposition (interne, externe) et de rayonnements (gamma, alpha, bêta) nécessite par ailleurs l'application de facteurs de sécurité. Afin d'intégrer l'incertitude sur le débit de dose maximum pour lesquels 95 % des espèces sont protégées ou HDR_{95} estimée à partir de données d'exposition gamma externe mais pouvant être appliquée à une situation d'exposition quelconque (irradiation interne et externe par rayonnements α , β et γ), un facteur de sécurité de 5 a été appliqué à l' HDR_{95} ainsi déterminé (ERICA 2006), en cohérence avec ce qui est préconisé dans le domaine chimique. En effet, la méthode européenne recommandée dans ce domaine (EC, 2003) conduit à appliquer un facteur de sécurité de 1 à 5 à la valeur de HC_5 obtenue par la méthode de SSD en fonction de la qualité et de la quantité des données d'exposition utilisées pour ajuster cette distribution. Dans l'application de cette approche au cas du tritium, la valeur maximale du facteur a été donc retenue.

La faiblesse de certaines valeurs d' EDR_{10} estimées pour le tritium (HTO) et les espèces de mollusques et de crustacés qui ont fait l'objet d'études d'écotoxicité conduit à s'interroger sur la valeur préconisée de 10 $\mu\text{Gy/h}$ comme critère de protection des écosystèmes. 35% des 24 données répertoriées dans le tableau 8.9 sont en effet inférieures à cette valeur ; ces données sont toutefois toutes relatives à des effets observés sur une espèce de crustacés (*Daphnia magna*) et une espèce de mollusques (*Mytilus edulis*).

Figure 8.1 - Distribution de la sensibilité des espèces d'un écosystème générique (applicable pour tout écosystème terrestre, marin ou aquatique continental) pour les situations d'exposition chronique par irradiation externe par des émetteurs γ (PROTECT, 2008).

La valeur estimée d' HDR_{95} est 17 $\mu\text{Gy/h}$ avec un intervalle de confiance à 95% de 2 à 211].

La valeur dite sans effet ou PNEDR (Predicted No Effect Dose Rate) est obtenue par l'application d'un facteur de sécurité égal à 5.



9 | Conclusion

Le tritium est un isotope radioactif de l'hydrogène qui, à la fois, a une origine naturelle (inventaire permanent de 3,5 kg à l'échelle planétaire, avec une production naturelle mondiale d'environ 200 g par an) et est largement produit par des activités humaines depuis la seconde moitié du 20^{ème} siècle. En particulier, de grandes quantités de tritium ont été relâchées dans l'atmosphère durant la période des essais aériens d'armes nucléaires, entre 1945 et 1980. Le tritium émis lors des explosions nucléaires est à l'heure actuelle principalement localisé dans les océans, en quantité ayant fortement diminué du fait de la décroissance radioactive. Il était estimé en 2007 à 35 kg. L'industrie nucléaire (réacteurs de puissance, réacteurs expérimentaux, usines de traitement des combustibles usés) continue, de manière localisée, à rejeter du tritium dans l'environnement. Aujourd'hui, avec le carbone-14, le tritium est le radionucléide prépondérant en termes d'activité rejetée par les installations nucléaires françaises, tant dans les rejets liquides que dans les rejets gazeux (hors gaz rares). En 2008, les installations nucléaires françaises ont rejeté au total une masse de 1,7 g de tritium dans l'atmosphère avec les effluents gazeux et une masse de 25,7 g dans les océans et une moindre mesure les cours d'eau, avec les effluents liquides. Les rejets de tritium augmenteront dans les années à venir, avec le passage à de nouveaux modes de gestion du combustible dans les centrales nucléaires puis avec le développement du projet ITER.

La caractéristique fondamentale du tritium, en termes de comportement dans l'environnement, est son extrême propension à s'échanger plus ou moins rapidement avec l'isotope 1 de l'atome d'hydrogène, en particulier lorsqu'il se trouve sous une forme dite labile, notamment d'eau liquide ou de vapeur d'eau. Au niveau du globe, ce sont essentiellement des processus physiques associés au cycle de l'eau qui influencent la dynamique du tritium, en particulier en termes de temps de résidence dans les grands compartiments : stratosphère, atmosphère, biosphère, océans, eaux souterraines.

Du point de vue de la surveillance et de la mesure du tritium en France, le tritium est mesuré dans les hydrosystèmes continentaux et marins, ainsi que dans les espèces vivantes indicatrices. La principale technique de mesure utilisée en routine est la scintillation liquide, pour laquelle les limites de détection sont élevées en comparaison des autres radionucléides mesurés dans l'environnement (un facteur mille pour les radionucléides émetteurs gamma dans l'eau par exemple). Il en résulte qu'une fraction de plus en plus importante des mesures de surveillance donne des valeurs inférieures aux limites de détection. Ainsi, pour le tritium libre dans les échantillons biologiques en milieu terrestre, en moyenne deux tiers seulement des échantillons présentent des valeurs supérieures à la limite de détection. Dans un contexte général où il est observé une diminution des activités en tritium dans l'environnement depuis une quinzaine d'années, il est aujourd'hui délicat de quantifier des marquages en milieu continental imputables aux installations nucléaires. Pour ce qui concerne le milieu marin, le tritium n'est mesurable en routine que dans la Manche orientale, alors que les rejets des centrales nucléaires concernent également les côtes atlantiques et méditerranéennes. Des techniques de mesure permettent d'améliorer les limites de détection d'un facteur dix à mille. Elles ne sont mises en œuvre que par quelques laboratoires dans le monde et n'ont été utilisées que ponctuellement, en France, pour des études spécifiques. Une utilisation plus régulière de ces techniques dans le cadre d'études radioécologiques permettrait de mieux apprécier la dispersion des rejets chroniques et d'améliorer l'inventaire des sources. Une métrologie plus précise serait également précieuse pour améliorer la connaissance du comportement du tritium au sein des écosystèmes.

La très grande mobilité du tritium est une source importante de difficultés et d'incertitudes en ce qui concerne la préparation des échantillons pour la mesure de ce radionucléide. L'absence de définition consensuelle « normalisée » des fractions « tritium organique strictement non échangeable », « tritium organique échangeable » et « tritium libre »

conduit, d'une part à une incertitude sur la proportion exacte de ces deux fractions et d'autre part à la difficulté de comparer des résultats de mesures ou d'essais expérimentaux issus de diverses références bibliographiques. Il serait très utile qu'une définition unique de ces fractions, forcément associée à l'établissement de protocoles standards de préparation et mesure du tritium au sein des échantillons, soit émise par la communauté scientifique.

Dans l'atmosphère, le tritium se trouve principalement sous forme d'eau tritiée (HTO) liquide ou vapeur et, dans une moindre mesure, sous forme d'hydrogène tritié (HT) et de méthane tritié (CH₃T). L'hydrogène tritié subit une oxydation microbienne en HTO dès qu'elle pénètre dans le sol. Il y a ensuite rapidement réémission vers l'atmosphère ou migration vers le sous-sol. Le devenir de HTO et HT est correctement appréhendé, probablement de façon conservatrice, en considérant que tout le tritium émis se trouve sous forme HTO, bien que les cinétiques d'évolution ne soient sans doute pas comparables. On ne connaît guère le devenir de la forme CH₃T et encore moins celle des éventuelles autres formes organiques émises. Celles-ci, si elles existent dans les rejets atmosphériques, pourraient avoir un comportement plus pénalisant que celui de l'eau tritiée. Il conviendrait de s'assurer qu'elles n'aboutissent pas à augmenter le transfert à la biomasse terrestre.

Au sein des écosystèmes, aux processus physico-chimiques viennent s'ajouter des mécanismes biologiques qui déterminent une évolution compliquée, en rapport avec la photosynthèse et le métabolisme cellulaire faisant couramment intervenir l'élément hydrogène, constituant la majeure de la matière vivante. Notamment, les formes sous lesquelles se trouve le tritium organique chez les organismes vivants, végétaux ou animaux, font encore l'objet de recherches. Cette fraction organique ou « OBT » est constituée de tritium organiquement lié échangeable et de tritium organiquement lié non échangeable qui diffèrent par la position et le type de liaisons chimiques entre l'hydrogène et les autres éléments constitutifs des molécules organiques. La répartition entre eau tritiée, tritium échangeable et tritium non échangeable diffère en fonction des apports respectifs en HTO et OBT, de la qualité de l'OBT et du métabolisme propre à chaque espèce.

Le transfert du tritium aux végétaux est bien connu en ce qui concerne les processus impliqués. Il s'effectue en totalité sous forme d'eau (vapeur ou liquide) tritiée. Le tritium s'échange avec la vapeur d'eau de l'atmosphère par la biomasse aérienne et s'incorpore à l'eau du végétal par l'absorption racinaire. Les processus mis en jeu sont très rapides (quelques minutes à quelques heures). Une fraction du tritium se retrouve incorporée ou piégée dans la matière organique, mais, quantitativement, les valeurs nécessaires à la prédiction précise de son transfert restent rares et surtout éparpillées, en particulier pour des rejets ponctuels. La très grande variabilité de son comportement en fonction de la durée des expositions, des paramètres environnementaux (humidité de l'air, état hydrique du végétal, jour/nuit, durée du rejet...) font que chaque résultat d'essai donne des valeurs spécifiques aux conditions dans lesquelles a eu lieu l'expérimentation et sont donc difficilement généralisables.

Néanmoins, l'analyse des données recueillies sur le territoire français depuis plusieurs années ne met pas en évidence de bioaccumulation de la part du compartiment végétal. Le fait d'observer parfois des facteurs de concentration¹⁴ supérieurs à 1 dans certains végétaux peut s'expliquer par un phénomène de rémanence du tritium organique dans des végétaux antérieurement exposés à une contamination ambiante prolongée et/ou importante. Selon le contexte de cette exposition (conditions agroclimatiques locales, durée et intensité de l'exposition), cette rémanence peut ou non se manifester. Dans le cas particulier des parties persistantes des végétaux pérennes, en particulier les bois d'arbres, il peut également être émis l'hypothèse d'une redistribution ultérieure du tritium à partir du pool de tritium organique des parties ligneuses vers l'ensemble du végétal. Ceci peut donc amener à retrouver ultérieurement un niveau de tritium organique dans le végétal récolté supérieur au niveau de tritium sous forme d'eau ou dans l'atmosphère au moment du prélèvement.

¹⁴ Rapport de la concentration du tritium organique du végétal (OBT Bq/L d'eau extraite de la matière sèche de l'échantillon) sur celle du tritium environnemental (Bq/L de vapeur d'eau atmosphérique, ou à défaut, Bq/L d'eau de pluie, ou à défaut Bq/L de HTO du végétal)

Les données relatives aux produits d'origine animale du milieu terrestre sont peu nombreuses et ce sont surtout des modèles physiologiques sur le comportement du tritium dans les animaux en vue d'estimer les concentrations dans les productions (lait, viandes...) qui ont fait l'objet de publications. Dans les échantillons de produits d'origine animale mesurés en France en milieu terrestre, on ne note pas de valeurs particulièrement élevées. Les facteurs de transfert évalués récemment sont toujours inférieurs à l'unité, ce qui va dans le sens d'une absence de bioaccumulation du tritium dans les denrées d'origine animale.

En milieu aquatique marin et continental, s'il est acquis que le transfert d'eau tritiée aux organismes aquatiques conduit très rapidement à un équilibre entre HTO du milieu d'exposition et tritium libre des tissus biologiques, les échanges mettant en jeu des formes organiques du tritium sont moins bien connus. Plus particulièrement chez les poissons marins ou d'eau douce qui représentent le compartiment vivant chez lesquels il existe le plus de données in situ, mais aussi chez des invertébrés marins, des facteurs de concentration $OBT_{organisme}/HTO_{eau}$ supérieurs à 1 ont été relevés en diverses situations par des auteurs (cas de la baie de Cardiff), en rapport avec l'origine et la forme physico-chimique du tritium incorporé (incorporation par voie alimentaire de molécules organiques tritiées). La description théorique des processus d'assimilation et d'excrétion des composés organiques du tritium ne peut être envisagée que dans la mesure où la nature et la spéciation physico-chimique de ces composés, une fois le tritium rejeté dans l'environnement aquatique, sont connues. De manière générale, l'observation de facteurs de concentration supérieurs à 1 doit inciter à approfondir les études afin de mieux comprendre les mécanismes de transfert et de spéciation du tritium et ne doivent pas être assimilés à un facteur de bioaccumulation.

Dans le domaine de la modélisation, alors que les données nécessaires pour l'évaluation des transferts en milieu terrestre sont suffisantes, la modélisation du transfert du tritium au sein des hydrosystèmes continentaux est encore incomplète. Pour les processus physiques, ce sont les mécanismes de transport/diffusion/dispersion qui sont principalement pris en compte, et ce pour la forme HTO dans la colonne d'eau. Les interactions aux interfaces (air et sédiment) ainsi que la conversion $HTO \leftrightarrow OBT$ sont généralement ignorés à ce jour, sans que leur importance soit véritablement connue.

Concernant le transfert du tritium aux organismes, la plupart des modèles disponibles reposent sur une approche d'équilibre isotopique, pour laquelle il a été prouvé qu'elle était généralement satisfaisante pour le tritium libre des tissus. La modélisation des concentrations en OBT des organismes aquatiques, moins répandue, est abordée de manière plus diversifiée, avec des approches dynamiques incluant des processus physiologiques. Ce sont ces modèles qui donnent les résultats les plus proches des mesures lors des comparaisons modèles-mesures. Ils demandent cependant encore à être améliorés et validés.

L'état de la modélisation reflète celui des connaissances sur les transferts du tritium, les aspects demandant à être approfondis se rapportant principalement à ses formes organiques.

Concernant la toxicité du tritium sur les organismes non-humains, il existe seulement des données relatives à des animaux (invertébrés ou vertébrés). Il n'y a aucune donnée relative à la toxicité du tritium pour des modèles végétaux. Des travaux récents portant sur l'exposition au tritium d'un mollusque marin (*Mytilus edulis*) au stade œuf et au stade adulte, ont mis en évidence une grande sensibilité de cette espèce à partir de certains niveaux de débit de dose induit par le tritium incorporé : des dommages à l'ADN, dose-dépendant à partir de 13 $\mu\text{Gy/h}$, et des conséquences cytogénétiques (aberrations chromosomiques) non dose-dépendantes, de façon significative dès la dose de 1,3 $\mu\text{Gy/h}$. Les effets sur le développement rapportés dans la littérature chez *Daphnia magna* à partir de 3 $\mu\text{Gy/h}$ et s'aggravant au fil des générations, sous-tendent la nécessité de travaux de recherche pour comprendre et quantifier les risques d'induction et de transmission transgénérationnelle d'altérations génétiques. Les débits de dose pour lesquels des effets ont été observés pour ces espèces sont significativement plus faibles que la valeur de

10 $\mu\text{Gy/h}$ habituellement considérée comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma. Toutefois, ces niveaux de débit de doses correspondent à des concentrations de tritium dans les milieux nettement plus élevées que celles observées dans l'environnement, y compris autour des installations nucléaires. Au sein des données d'écotoxicité disponibles pour le tritium et contrairement aux données relatives à la toxicité des rayonnements gamma par irradiation externe, ce sont les invertébrés et non pas les vertébrés qui apparaissent les plus sensibles. Il conviendrait donc d'une part de confirmer l'hypersensibilité des invertébrés en élargissant la diversité des espèces testées et, si le cas est avéré, de rechercher les mécanismes spécifiques qui pourraient être mis en œuvre pour expliquer ce phénomène.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Abbott, D. T. and M. C. Mix (1979).** «Radiation effects of tritiated seawater on development of the goose barnacle, *Pollicipes polymerus*.» *Health Physics* 36: 283-287.
- ACRP Advisory Committee on Radiological Protection (2002).** Protection of Non-Human Biota from Ionizing Radiation, Canadian Nuclear Safety Commission (CNSC) (2002) INFO-0730, March.
- ACRO (2003).** Inventaire des concentrations en tritium des eaux du département de La Manche.
- IAEA (1981).** Tritium in some typical ecosystems. Technical report 207, IAEA, Vienne.
- AIEA (2006).** IAEA/WMO, 2006. Global Network of Isotopes in Precipitation. The GNIP database. Available from: <<http://isohis.iaea.org>>.
- Alexeyeva, E.S., Belonozhko, V.Y. (1981).** Chronical irradiation of plants as a method of creating initial material in buckwheat breeding. Proceedings of the USSR Academy of Agricultural Sciences (VASHNIL) 7, 5-8.
- Antonelli (2008).** Niveau d'activité du tritium dans l'environnement. Rapport IRSN/DEI/SESURE N°2008-34.
- Antonelli, C., Eyrolle, F. (2010).** Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée – Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA). Rapport IRSN/DEI/SESURE N° 2010-04.
- Atarashi-Andoh M., Amano H., Kakiuchi H., Ichimasa M., Ichimasa Y. (2002).** Formation and retention of organically bound deuterium in rice in deuterium water release experiment. *Health Physics*, 82, 863-868.
- Baeza, A. et al. (2001).** Spatial and temporal evolution of the levels of tritium in the Tagus river in its passage through Cáceres (Spain) and the Alentejo (Portugal). *Water Research*, 35(3): 705.
- Baglan N., Alanic G., Pointurier F. (2005).** Tritium Determination at Trace Level: Which Strategy to Determine Accurately HTO and OBT in Environmental Samples? *Fusion Science and Technology*, 48, 749-754.
- Bailly du Bois P., Guéguénat P. (1999).** Quantitative assessment of dissolved radiotracers in the English Channel : sources, average impact of the Hague reprocessing plant and conservative behaviour (1983, 1986, 1988 and 1994). Continental Shelf Research ; FluxManche II Dedicated Volume Vol. 19 pp 1977-2002.
- Bailly du Bois P., Germain P., Rozet M., Solier L. (2002).** Water masses circulation and residence time in the Celtic Sea and English Channel approaches, characterisation based on radionuclides labelling from industrial releases. Proceedings from the International Conference on Radioactivity in Environment, Ed. by Peer Borretzen, Torun Jolle, Per Strand Monaco 1 - 5 September 2002, pp. 395 - 399.
- Bailly du Bois P., Dumas F. (2005).** Fast hydrodynamic model for of medium- and long-term dispersion in seawater in the English Channel and southern North Sea, qualitative and quantitative validation by radionuclide tracers. *Ocean Modelling* Vol 9/2 pp 169-210.

- Bailly du Bois P., Dumas F., Solier L. (2005). Hydrodynamic modeling of short-term dispersion in a macro-tidal sea, validation by high-resolution radionuclide tracer measurements. Radioprotection, Proceedings ECORAD 2004 «The scientific basis for environment protection against radioactivity» Aix-en-Provence (France), 6-10 september, 2004. Edited by: J.C. Barescut, J.C. Gariel and J.M. Peres 40(1):563-568.
- Bailly du Bois P. (2006). Qualification du modèle de dispersion dans le champ proche de l'émissaire de rejet en mer de l'établissement AREVA-NC de La Hague, mise à jour DISPRO V.2. Rapport IRSN/DEI/SE-CRE 2006-46 26 p.
- Balesdent J., Recous S. (1997). Les temps de residence du carbone et le potentiel de stockage de carbone dans quelques sols cultivés français. *Canadian Journal of Soil Science*, 77, 187-193.
- Balonov M, Chetchueva ME, Pomerantseva MD and Ramaja LK (1992a). The mutagenic effect of 3H-thymidine on germ cells of male mice. *Genetika (Genetics)*, 28 (3), pp.147-154 (in Russian).
- Balonov M, Chetchueva ME, Pomerantseva MD and Ramaja LK (1992b). The mutagenic effect of 3H-deoxycytidine on germ cells of male mice. *Genetika (Genetics)*, 28 (3), pp.155-162 (in Russian).
- Balonov M and Kudritskaya OY (1984). The mutagenic effect of tritium on germ cells of male mice. Report 1. Induction of dominant lethal mutations by tritium oxide and the estimation of RBE. *Genetika (Genetics)*, v.XX, N.2, pp.224-231 (in Russian).
- Baptist, J.P., Wolfe, D.A., Colby, D.R. (1976). Effects of chronic gamma radiation on the growth and survival of juvenile clams (*Mercenaria mercenaria*) and scallops (*Argopecten irradians*). *Health Physics* 30, 79-83.
- Barry P. J., Watkins B. M., Belot Y., Davis P. A., Edlund O., Galeriu D., Raskob W., Russell S., Togawa O. (1999). Intercomparison of model predictions of tritium concentrations in soil and foods following acute airborne HTO exposure. *J. Environ. Radioactivity*, 42, 191-207.
- Baumgärtner F., Kim M. A. (2000). Tritium/Protium Fractionation Near and Inside DNA. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 243, 295-298.
- Baumgärtner F. (2000). Theoretical foundation and experimental proof of the accumulating transfer of tritium from water into DNA and other biomolecules in vitro and in vivo. *Radiation Biology and Radioecology*, 40:495-499.
- Baumgärtner F., Ch. Kardinal, Müllen G. (2001). Distribution of tritium between water and exchangeable hydrogen bridges of biomolecules. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249, 513-517.
- Baumgärtner F., Donhaerl W. (2004). Non-exchangeable organically bound tritium (OBT): its real nature. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 379, 204-209.
- Baumgärtner F. (2005). Accumulative tritium transfert from water into biosystems. *Fusion Sci. Technol.*, 48:787-790.
- Bilans de la surveillance de l'environnement par Areva (2006 et 2007)
- Beaugelin-Seiller, K., F. Jasserand, J. Garnier-Laplace, J.C. Gariel (2006). «Modeling radiological dose in non-human species: Principles, computerization, and application.» *Health Physics* 90(5): 485-493.
- Belovodski L. F., Gaevoy V. K., Golubev A. V., Kosheleva T. A. (1997). Tritium oxide wash-out by drops. *Journal of Environmental Radioactivity. Environmental Tritium*, 36, 129-139.
- Belot Y., D. Gauthier, H. Camus et Cl. Caput, (1979). Prediction of the flux of tritiated water from air to plant leaves. *Health Phys.*, 37, 575-583.
- Belot Y., Roy M., Métivier H. (1996). *Le tritium de l'environnement à l'Homme*. Les Ulis, Les éditions de physique.
- BIOMASS-3 IAEA (2003). Modelling the environmental transport of tritium in the vicinity of long term atmospheric and sub-surface sources. Report of the tritium working group, IAEA publication, ISBN 92-0-102303-0.
- Blaylock B.G., Hoffman F.O. et Frank M.L. (1986). Tritium in the aquatic environment. *Radiat. Prot. Dosim.* 16(1-2):65-71.
- Bocian, E., Ziemb-Zak, B., Rosiek, O., Sablinski, J. (1978). Chromosome aberrations in human lymphocytes exposed to tritiated water in vitro. *Current topics in radiation research quarterly*, 12 (1-4), pp. 168-181.
- Bolsunovsky, A.Y. and Bondareva, L.G. (2003). Tritium in surface waters of the Yenisei River basin. *Journal of Environmental Radioactivity*, 66(3): 285.
- Bonham, K., Donaldson, L.R. (1972). Sex ratios and retardation of gonadal development in chronically gamma-irradiated chinook salmon smolts. *Transactions of the American Fisheries Society* 101(3), 428-434.
- Boyer C, L. Vichot, M. Fromm, Y. Losset, F. Tatin-Froux, P. Guétat, P.M. Badot (2009). Tritium in plants: a review of current knowledge. *Environmental and experimental Botany*, in press.
- Browne E. et R. Firestone (1986). Table of radioactive isotopes. Shirley (Ed), Wiley Interscience Publication.
- Buldakov LA, Lubchansky ER, Moskalev Yul and Nifatov A.P. (1969). Problems of plutonium toxicology. Moscow, Atomizdat (in Russian).
- Calmon P. et Garnier-Laplace J. (2001). Tritium et environnement, collection des fiches « Radionucléides et environnement » IRSN, 15p.
- Choi Y. H., Kim S. B., Lim K. M., Park H. K., Lee W. Y. (2000). Incorporation into organically bound tritium and the underground distribution of HTO applied to a simulated rice field. *Journal of Environmental Radioactivity*, 47, 279-290.
- Choi Y. H., Lim K. M., Lee W. Y., Diabate S., Strack S. (2002). Tissue free water tritium and organically bound tritium in the rice plant acutely exposed to atmospheric HTO vapor under semi-outdoor conditions. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58, 67-85.
- Choi Y.-H., Kang H.-S., Jun I., Keum D.-K., Lee H., Kim S.-B., Lee C.-W. (2007). Fate of HTO following its acute soil deposition at different growth stages of Chinese cabbage. *Journal of Environmental Radioactivity*, In Press, Corrected Proof.
- CERRIE (2004). Report of the Committee Examining radiation Risks of Internal Emitters (CERRIE). www.cerrie.org.
- Ciffroy P., Siclet F., Damois C. et Luck M. (2006). A dynamic model for assessing radiological consequences of tritium routinely released in rivers. Application, to the Loire River. *J. Environ. Radioactiv.* 90:110-139.
- Cooley, J.L., Nelson, D.J. (1970). Effects of chronic irradiation and temperature on populations of the aquatic snail *Physa heterostrophia*. PhD Thesis, University of Tennessee. 71pp.
- Cruz-Ramos, B. and V. S. Carino (1989). «Effects of tritiated water on the digestive tract of *Piula luzonica* embryos.» *The Nucleus* 27: 63-70.
- Débat public d'ITER – analyse des risques (www.debatpublic-iter.org) – CNDP
- Descamps B., Carrère D., Laurent N. (1995a). Étude du marquage des feuilles de chêne de l'environnement du site de Marcoule par le tritium contenu dans les rejets atmosphériques, prélèvements d'octobre 1992. *Rapport IPSN/DPEI/SERE* 95-021.
- Descamps B., Carrère D., Laurent N. (1995b). Mesure de l'activité du tritium non labile lié à la matière organique sur les cernes annuels de croissance d'un chêne. Reconstitution de de l'historique des rejets de Marcoule pour la période 1967-1992. *Rapport IPSN/DPEI/SERE*-95-021.
- Diabaté S. et Strack S (1993). Organically Bound Tritium. *Health Physics*, 65(6): 698-712.
- Dobson, R.L. et Kwan, T.C. (1977). The tritium RBE at low-level exposure - variation with dose, dose rate and exposure duration. *Current Topics in Radiation Research Quarterly*, 12, 44-62.
- Dominik, J., D. Burrus et J. P. Vernet (1987). «Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed.» *Earth and Planetary Science Letters* 84(2-3): 165-180.
- Dugle, J.R (1986). Growth and morphology in balsam fir: effects of gamma radiation. *Canadian Journal of Botany* 64, 1484-1492.
- Easton, D. and Murphy, C.E. (1991). Tritium uptake by fish in a small stream, Westinghouse Savannah River Company.
- EC (2003). Technical guidance document on risk assessment in support of Commission Directive 93/67/EEC on risk assessment for new notified substances and Commission Regulation (EC) No. 1488/94 on risk assessment for existing substances, Luxembourg: Office for Official Publication of the European Communities.
- Edwards R. (1998). Hot seafood. Issue 2158 of New Scientist magazine, 31 October 1998, page 10.

- Elwood J.W. (1971).** Tritium Behaviour in Fish from a Chronically Contaminated Lake. Proceedings of Third National Symposium on Radioecology, Oak Ridge, Tennessee, May 1971.
- Egami, N., Hama-Furukawa, A. (1981).** Response to continuous gamma irradiation of germ cells in embryos and fry of the fish *Oryzias latipes*. *International Journal of Radiation Biology* 40(5), 563-568.
- Environment Canada (2000).** «Priority substances list assessment report (PSL2). Releases of radionuclides from nuclear facilities (Impact on non-human biota).» Environment Canada and Health Canada, Ottawa.
- ERICA (2006).** (Agüero, A., Alonzo, F., Copplestone, D., Jarowska, A., Garnier-Laplace, J., Gilek, M., Larsson, C.M., Oughton D.). Derivation of Predicted No-effect Dose rates values for ecosystems and their sub-organisational level exposed to radioactive substances. Deliverable D5, European Commission, 6th Framework, Contract N°F16R-CT-2003-508847. Garnier-Laplace J. & Gilbin R. (Eds).
- Erickson, B.H. (1978).** Effect of continuous gamma-radiation on the stem and differentiating spermatogonia of the adult rat. *Mutation Research* 52, 117-128.
- Erickson, B.H., Martin, P.G. (1976).** Effects of continuous prenatal gamma radiation on the pig and rat. IAEA, Biological Environmental Effects of Low Level Radiation, IAEA, Vienna. 111-117.
- Etoh, H. and Y. Hyodo-Taguchi (1983).** «Effects of tritiated water on germ cells in Medaka embryos.» *Radiat. Res.* 93: 332-339.
- Fan, A. and Alexeeff, G. (2006).** Tritium, Office of Environmental Health Hazard Assessment, California Environmental Protection Agency.
- FASSET (2003).** (Daniel DP, Garnier-Laplace J, Gilek M, Kautsky U, Larsson CM, Pentreath J, Real A, Skarphedinsdottir H, Sundbell-Bergman S, Thorning H, Woodhead DS, Zinger I). Radiation effects on plants and animals Deliverable 4, FASSET Project Contract FIGE-CT-2000-00102, Woodhead and Zinger (Eds). 196.
- FASSET (2004).** Framework for assessment of environmental impact of ionising radiation in major European ecosystems. Deliverable 6, Euratom, Contract N°FIGE-CT-2000-00102, EC 5th Framework Programme, Larsson CM (Eds).
- Ferenbaugh, J.K., Fresquez P.R., Ebinger M.H. and Gonzales G.J. (2002).** Radionuclides in Soil and Water Near a Low-Level Disposal Site and Potential Ecological and Human Health Impacts. *Environmental Monitoring and Assessment* (74): 243-254.
- Fiévet B. and Plet D (2003).** Estimating biological half-lives of radionuclides in marine compartments from environmental time-series measurements. *Journal of Environmental Radioactivity* 65:91-107.
- Fiévet B., Voiseux C, Rozet M, Masson M, and Bailly du Bois P (2006).** Transfer of radiocarbon liquid releases from the AREVA La Hague spent fuel reprocessing plant in the English Channel. *Journal of Environmental Radioactivity* 90:173-196.
- Fontugne M., Abril G., Bacon A., Baumier D., Commarieu M.V., Connan O., Etcheber H., Germain P., Hébert D., Jean-Baptiste P., Lozac C., Maro D., Olivier A., Paterne M., Podevin V., Poirier D., Rozet M., Tenailleau L. (2007).** Transferts de carbone 14 et de tritium entre la Loire et l'atmosphère. Rapport final LORA : Contrat de partenariat EDF/CNRS. Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (UMR 1572 CNRS/CEA/UVSQ), 91198 Gif sur Yvette.
- Garcia-Sanchez, L. (2005).** Revue des modèles opérationnels de transfert de radionucléides par ruissellement et érosion. IRSN *Rapport DEI/SECRE/2005-44*.
- Garnier-Laplace, J., C. Della-Vedova, et al. (2006).** «First application of Species Sensitivity Distributions to derive no-effect values for freshwater and terrestrial ecosystems exposed to radioactive substances.» *Environmental Science and Technology* 40(20): 6498-6505.
- Garnier-Laplace, J., Copplestone, D., Gilbin, R., Alonzo, F., Cifroy, P., Gilek, M., Agüero, A., Björk, M., Oughton, D.H., Jaworska, A., Larsson, C-M., Hingston, J.L. (2008).** Issues and practices in the use of effects data from FREDERICA in the ERICA Integrated Approach. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99 (9) 1474-1483.
- Galeriu D., Crout N. M. J., Melintescu A., Beresford N. A., Peterson R., Van Hees M. (2001).** A metabolic derivation of tritium transfer coefficients in animal products. *Radiat Environ Biophys*, 40, 325-334.
- Galeriu D., Melintescu A., Beresford N. A., Crout N. M. J., Takeda H. (2005).** 14C and tritium dynamics in wild mammals: A metabolic model. *Radioprotection*, 40 Suppl. 1 (May 2005 Ecorad-2004), S351-58.
- Galeriu D., Melintescu A., Beresford N. A., Crout N. M. J., Peterson R., Takeda H. (2007).** Modelling 3H and 14C transfer to farm animals and their products under steady state conditions. *Journal of Environmental Radioactivity*, 98, 205-217.
- Galeriu D., A. Malinescu, N.A. Beresford, H. Takeda, N.M.J. Crout (2009).** The dynamic transfer of 3H and 14C in mammals: a proposed generic model. *Radiation and Environmental Biophysics*, 48 (1), pp. 29-45.
- Gilbin R., Alonzo F., Garnier-Laplace, J. (2008).** Effects of chronic gamma external irradiation on physiology, growth and reproductive success of *Daphnia magna*. Implications for environmental radioprotection, *Journal of Environmental Radioactivity* 99, 1, 134-145.
- Gómez-Ros, J., G. Pröhl, et al. (2004).** «Estimation of internal and external exposures of terrestrial reference organisms to natural radionuclides in the environment.» *J Radiol. Prot.* 24: 79-88.
- Goutal, N., M. Luck, P. Boyer, L. Monte, F. Siclet and G. Angeli (2008).** «Assessment, validation and intercomparison of operational models for predicting tritium migration from routine discharges of nuclear power plants: the case of Loire River.» *Journal of Environmental Radioactivity* 99: 367-382.
- Gragtmans, N.J., Myers, D.K., Johnson, J.R. (1984).** Occurrence of mammary tumors in rats after exposure to tritium beta rays and 200-kVp X rays. *Radiation Research*, 99 (3), pp. 636-650.
- Greenpeace (2007).** Tritium hazard report: pollution and radiation risk from canadian facilities. Greenpeace, june 2007, 92 p.
- Gudkov, D. I. and L. S. Kipnis (1996).** «Long-term effect of tritiated water on the biological indicators of *Daphnia magna*.» *Hydrobiol. J.* 32(5&6): 1-10.
- Haas, R.J. et Flidner, T.M. (1971).** The effect of tritiated thymidine on the oocytes of foetal rats following maternal infusion in pregnancy. *International Journal of Radiation Biology*, 19(2), 197-200.
- Hagger, J. A., F. A. Atienzar, et al. (2005).** «Genotoxic, cytotoxic, developmental and survival effects of tritiated water in the early life stages of the marine mollusc, *Mytilus edulis*.» *Aquat. Toxicol.* 74: 205-217.
- Harrison F.L. et Korrandaa J.J. (1971).** Tritiation of Aquatic Animals in an Experimental Freshwater Pool. Proceedings of Third National Symposium on Radioecology, Oak Ridge, Tennessee, May 1971.
- Hertel-Aas T., Oughton D.H., Jaworska A., Bjerke H., Salbu B., Brunborg G. (2007).** Effects of chronic gamma irradiation on reproduction in the earthworm *Eisenia fetida* (Oligochaeta). *Radiation Research* 168, 515-528.
- Higuchi, M., K. Komatsu, et al. (1980).** Assessment of tritium effect on brine shrimp, *Artemia salina*, reared in a model ecosystem contaminated with tritiated water. Radiation effects on aquatic organisms. N. Egami. Baltimore, Japan Sci. Soc. Press, Tokyo/Univ. Park Press: 13-25.
- Hingston, J.L., Knowles, J.F., Walker, P.J., Wood, M.D., Copplestone, D. (2004).** Effects of ionising radiation on soil fauna. Environment Agency R&D Technical Report P3-101/SP7.
- HPA (2007).** Review of risks from tritium. Report of the independent Advisory Group of Ionizing Radiation. www.hpa.org.uk.
- Hyodo-Taguchi, Y. and N. Egami (1977).** «Damage to spermatogenic cells in fish kept in tritiated water.» *Radiat. Res.* 71(641-652).
- Hyodo-Taguchi, Y. and H. Etoh (1986).** «Effects of tritiated water on germ cells in Medaka. II. Diminished reproductive capacity following embryonic exposure.» *Radiat. Res.* 106: 321-330.
- Hyodo-Taguchi Y. and H. Etoh (1993).** Vertebral malformations in Medaka (Teleost fish) after exposure to tritiated water in the embryonic stage. *Radiat. Res.* 135: 400-404.

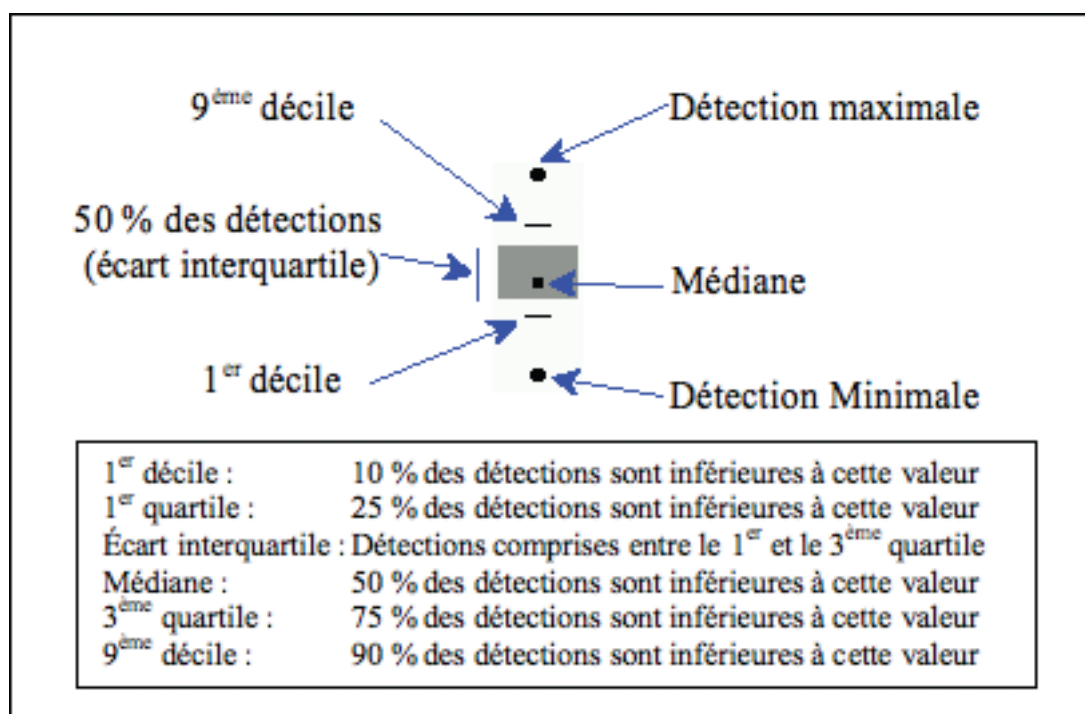
- IAEA (2003). BIOMASS 3 Modelling the environmental transport of tritium in the vicinity of long term atmospheric and sub-surface sources. IAEA, Vienne, ISBN 92-0-102303-0.
- ICCP (2001). International Panel on Climate Change. Report of the working group 1: The scientific basis, Chap. 4 Atmospheric chemistry and greenhouse gases.
- Ichimasa, M., Sasajima, E., Sato, K. and Ichimasa, Y. (2000). Tritium, deuterium and gamma-emitting nuclides in plant leaves in the JCO campus. *Journal of Environmental Radioactivity*, 50(1-2): 145.
- Imaizumi H. (1999). T-for-H exchange reaction between HTO vapor and two functional groups in an aromatic compound in a gas-solid system. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 241, 451-455.
- International Commission on Radiological Protection (1983). Radionuclide transformations energy and intensity of emissions. ICRP Publication 38, Pergamon Press, Oxford.
- IPSN (1984). Point zéro radiohydrobiologique du site de Flamanville (Contrat EDF V-1553). CEA-IPSN-DERS-SERE-Laboratoire de Radioécologie Marine ; Texte 35p : annexe 1 méthodologie 18p ; annexe 2 tableaux et figures 83p.
- IRSN (2007). Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2006 – Synthèse des résultats des réseaux de surveillance de l'IRSN. *Rapport IRSN/DEI/SESURE N°2007-72*.
- IRSN (2009). Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2008 – Synthèse des résultats des réseaux de surveillance de l'IRSN. *Rapport IRSN/DEI N°2009-04*.
- Jean-Baptiste P., Messias M. J. (1993). Using tracers to study ocean circulation: what more can we learn by the year 2000. *Ann. Inst. océanogr.*, Paris, 1993 Vol. 69 (2), pp. 283-305. RIFE 12, Radioactivity in food and the environment, 2006. Environment Agency, Environment and Heritage Service Food, Standards Agency, Scottish Environment Protection Agency ; November 2007, 238 p.
- Jean-Baptiste P., Baumier D., Fourre E., Dapoigny A., Clavel B. (2007). The distribution of tritium in the terrestrial and aquatic environments of the Creys-Malville nuclear power plant (2002-2005). *Journal of Environmental Radioactivity*, 94, 107-118.
- Jha, A. N., Y. Dogra, et al. (2005). «Impact of low doses of tritium on the marine mussel *Mytilus edulis* : genotoxic effects and tissue-specific bioconcentration.» *Mutat. Res.* 586(1): 47-57.
- Johnson, J.R., Myers, D.K., Jackson, J.S., Dunford, D.W., Gragtmans, N.J., Wyatt, H.M., Jones, A.R., Percy, D.H. (1995). Relative biological effectiveness of tritium for induction of myeloid leukemia in CBA/H mice. *Radiation Research*, 144 (1), pp. 82-89.
- Joshi, S. and R. C. McCrea (1992). «Sources and behavior of anthropogenic radionuclides in the Ottawa river waters.» *Water, Air and Soil Pollution* 62: 167-184.
- Keum D., Lee H., Kang H., Jun I., Choi Y., Lee C. (2006). Prediction of tritium level in agricultural plants after short term exposure to HTO vapor and its comparison with experimental results. *Health Physics*, 90, 42-55.
- Kirchmann R., Bonotto S., Soman S.D., Krishnamoorthy T.M., Iyengar T.S., Moghissi A.A. (1979). Transfer and incorporation of tritium in aquatic organisms. *Proceedings of the Symposium «Behaviour of Tritium in the Environment»*, San Francisco, 16-20 Octobre 1978. IAEA-SM-232/96, pp 187-204.
- Kim, C.-K., Rho, B.-H. and Lee, K.J. (1998). Environmental tritium in the areas adjacent to Wolsong nuclear power plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 41(2): 217.
- Knowles, J.F. (1999). Long-term irradiation of the marine fish, the plaice *Pleuronectes platessa*: an assessment of the effects on size and composition of the testis and of possible genotoxic changes in peripheral erythrocytes. *International Journal of Radiation Biology* 75, 6, 773-782.
- Knowles, J.F., Greenwood, L.N. (1994). The effects of chronic irradiation on the reproductive performance of *Ophryotrocha diadema* (Polychaeta, Dorvilleidae). *Marine Environmental Research* 38, 207-224.
- Knowles, J.F., Greenwood, L.N. (1997). A comparison of the effects of long-term beta and gamma irradiation on the reproductive performance of a marine invertebrate *Ophryotrocha diadema* (Polychaeta, Dorvilleidae). *Journal of Environmental Radioactivity*, 34(1), 1-7.
- Koarashi J., Amano H., Andoh M., Iida T., Koma T. (2001). A new method for determining HT deposition velocity and dependence of the velocity on environmental factors. *Radiation Protection Dosimetry*, 93, 237-243.
- Komatsu, K., M. Higuchi, et al. (1981). «Accumulation of tritium in aquatic organisms through a food chain with three trophic levels.» *J. Radiat. Res.* 22(2): 226-241.
- Kozłowski, R., Bouffler, S.D., Haines, J.W., Harrison, J.D., Cox, R. (2001). In utero haemopoietic sensitivity to alpha, beta or X-irradiation in CBA/H mice. *International Journal of Radiation Biology*, 77 (7), pp. 805-815.
- Laskey JW, Parrish JL, Cahill DF (1973). Some effects of lifetime parental exposure to low levels of tritium on the F2 generation. *Radiat Res*, 56: 171-179.
- Laskey, J.W. et Bursian, S.J. (1976). Some effects of chronic tritium exposure during selected ages in the rat. *Radiation Research*, 67, 314-323.
- Le Dizès Maurel S. (2004). Modélisation du transfert de tritium issu de rejets atmosphériques dans les systèmes agricole et anthropique. Implémentation au formalisme SYMBIOSE. *Rapport IRSN/DEI/SECRE/2004-030*.
- Le Dizès Maurel S. (2005a). Analyses de sensibilité et d'incertitude du modèle TOCATA. *Rapport IRSN/DEI/SECRE/2005-36*.
- Le Dizès Maurel S. (2005b). Modélisation du transfert de tritium dans un écosystème agricole en réponse à des rejets atmosphériques accidentels. Applications numériques préliminaires. *Rapport IRSN/DEI/SECRE/2005-17*.
- Le Dizès Maurel S. (2005c). Test du module plante de TOCATA pour les rejets accidentels de tritium dans l'atmosphère. Intercomparaison dans le cadre du scénario «Soybean» (EMRAS AIEA). *Rapport IRSN/DEI/SECRE/2005-37*.
- Le Dizès Maurel S. (2006). Test des modules PLANTE et ANIMAL de TOCATA pour des rejets chroniques de tritium dans l'atmosphère. Intercomparaison dans le cadre du scénario «Pickering» (EMRAS AIEA). *Rapport IRSN/DEI/SECRE/2006-11*.
- Little, M. and B. Lambert (2008). «Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium.» *Radiat. Environ. Biophys.* DOI 10.1007/s00411-007-0143-y.
- Love A., Hunt J., Knezovitch J. (2003). Reconstructing Tritium Exposure Using Tree Rings at Lawrence Berkeley National Laboratory, California. *Environ. Sci. Technol.*, 37, 4330-4335.
- Makhijani, A. and Boyd, M. (2004). Nuclear Dumps by the Riverside: Threats to the Savannah River from Radioactive Contamination at the Savannah River Site.
- Maro D., Germain P., Calmet D. et Fournier M. (1998). Le tritium dans l'environnement proche du site de l'usine de retraitement de La Hague. *Rapport IPSN-SERE 98-029*.
- Maro D., Baron Y., Fontugne M., Hadji K., Hatte C., Germain P., Hébert D., Solier L. (2000). Evolution de la radioactivité artificielle dans un bioindicateur, l'ajonc d'Europe, autour de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague. Bilan de trois campagnes de mesures réalisées en 1997 et 1999 ; *Rapport DPRE/SERNAT/LERFA* ; 2000-37
- Maro D., Fontugne M., Hatté C., Hébert D., Rozet M., (2004). 14C sources and distribution in the vicinity of La Hague Nuclear reprocessing plant : Part II - *Marine environment Radiocarbon* Volume 46 N°2 PP 831-839.
- Maro D., Tenaillon L. Fontugne M., Germain P., Hébert D., Rozet M. (2005). Tritium transfer between sea and atmosphere in the English Channel (North Cotentin and Bay of Seine). *Radioprotection*, ECORAD 2004, Aix en Provence 6-10 septembre 2004, Suppl. 1, Vol. 40, pp. S589-S594

- Marshall, J.S. (1962).** The effects of continuous gamma radiation on the intrinsic rate of natural increase of *Daphnia pulex*. *Ecology* 43, 4, 598-607.
- Masson M. (2006).** Carbone 14 et tritium: atelier marin. Convention IRSN-EDF 200-2004. *Rapport DEI/SECRE* 2006-43. 16p.
- Masson M. (2008).** Bilan radioécologique décennal 2006 de l'environnement proche du centre nucléaire de production d'électricité de Flamanville. *Rapport IRSN/DEI/SECRE* 2008-41, 139p.
- Mathur-De Vré, R. and J. Binet (1984).** «Molecular aspects of tritiated water and natural water in radiation biology.» *Prog. Biophys. Molec. Biol.* 43: 161-193.
- McCubbin D, Leonard KS, Bailey A, Williams J, and Tossel P (2001).** Incorporation of organic Tritium (3H) by marine organisms and sediment in the Severn estuary / Bristol Channel (UK). *Marine Pollution Bulletin* 42:852-863.
- Melintescu A., Galeriu D. (2005).** A versatile model for tritium transfer from atmosphere to plant and soil. *Radioprotection*, Vol. 40 No. Suppl. 1 (May 2005 Ecorad-2004), S437-42.
- Miljevic, N., Sipka, V., Zujic, A. and Golobocanin, D. (2000).** Tritium around the Vinca Institute of Nuclear Sciences. *Journal of Environmental Radioactivity*, 48: 303-315.
- Mishima J., Steele C. M. (2002).** Oxidation of Tritium Gas Under Accident and Transport Conditions. Rapport - LA-UR-02-3803- U.S. Department of Energy Los Alamos, NM.
- Miyamoto K., Kimura K. et Hongo S. (1995).** A transfer model of tritium in a local hydrosphere. *Fusion Technol.*, 28: 910-917.
- Moiseenko, V. V., A. J. Waker, et al. (2001).** «Calculation of radiation-induced DNA damage from photons and tritium beta-particles Part II: Tritium RBE and damage complexity.» *Radiation and Environmental Biophysics* 40: 33-38.
- Momoshima N., Kakiuchi H., Okai T., Maeda Y. (1999).** Variation of tritium concentration in the course of the degradation of fresh pine needles on a forest floor. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 242, 173-175.
- Morris, J.E. (2006).** Organically bound tritium in sediments from the Severn estuary, UK, Faculty of engineering, science and mathematics, Southampton, 236 pp.
- Murphy Jr C. (1990).** The transport, dispersion and cycling of tritium in the environment. Rapport WSRC-RP-90-462, *Westinghouse, Savannah River Company, for the DOE*, 69 p.
- Murphy Jr. C. (1993).** Tritium transport and cycling in the environment. *Health Physics*, 65, 683-697.
- NCRP (1979).** Tritium and other radionuclide labeled organic compounds incorporated in genetic material. Bethesda, MD, National Council on Radiation Protection and Measurements.
- Nelson, V.A. (1971).** Effects of ionising radiation and temperature on the larvae of the Pacific Oyster, *Crassostrea gigas*. Radionuclides in Ecosystems: Proceedings of the Third National Symposium on Radioecology (Nelson, D. J. Ed) CONF-710501-P2 Oak Ridge, Tennessee, May 10-12, 1971, 1, 591-598.
- Noguchi H., Fukutani, S., Yokoyama, S., Kinouchi, N. (2001).** Deposition of tritiated water vapour to water surface in an outdoor field. *Radiation Protection Dosimetry*, 93, 167-172.
- Noguchi H., Yokoyama S. (2003).** Vertical profile of tritium concentration in air during a chronic atmospheric HT release. *Health Physics*, 84, 344-353.
- Nucléaire et environnement 2007 – EDF**
- Okai T., Momoshima N., Takashima Y. (1999).** Variation of atmospheric tritium concentrations
- O'Kula K. R., Thoman D. C. (2007).** Modeling atmospheric releases of tritium from nuclear installations. American Nuclear Society Embedded Topical Meeting - 2007 International Topical Meeting on Safety and Technology of Nuclear Hydrogen Production, Control, and Management : 189-197.
- Ota M., Yamazawa H., Moriizumi J., Iida T. (2007).** Measurement and modeling of oxidation rate of hydrogen isotopic gases by soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 97, 103-115.
- OFSP (2007).** Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnement en Suisse 2007.
- Pally M., Barré A. et Foulquier L. (1993).** Tritium associé à la matière organique de sédiments, végétaux et poissons des principaux cours d'eau français. *Verh. Internat. Verein. Limnol.* 25:285-289.
- Palomo, M., Peñalver, A., Aguilar, C. and Borrull, F. (2007).** Tritium activity levels in environmental water samples from different origins. *Applied Radiation and Isotopes*, 65(9): 1048.
- Peterson S.-R., Davis P. A. (2002).** Tritium doses from chronic atmospheric releases: a new approach proposed for regulatory compliance. *Health Physics*, 82, 213-225.
- Phillips, L.J., Coggle, J.E. (1988).** The radiosensitivity of embryos of domestic chickens and black-headed gulls. *International Journal of Radiation Biology* 53, 2, 309-317.
- Pietrzak-Flis, Z., et Wasilewska-Gomulka, M. (1984).** Effect of lifetime intake of organically bound tritium and tritiated water on the oocytes of rats. *Radiation Environmental Biophysics*, 23, 61-68.
- Pointurier, F., Baglan, N., Alanic, G. and Chiappini, R. (2003).** Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 68: 171-189.
- Pointurier F., Baglan N., Alanic G. (2004).** A method for the determination of low-level organic-bound tritium activities in environmental samples. *Applied Radiation and Isotopes Low Level Radionuclide Measurement Techniques - ICRM*, 61, 293-298.
- PROTECT (2008).** Deliverable 5 : Numerical benchmarks for protecting biota from radiation in the environment. Commission européenne, EURATOM Contrat 036425 (FI6R).
- RIFE (Radioactivity in Food and the Environment) N°11 (2006).** Environment Agency (UK) Report ISSN 1365-6414.
- Radwan, I., Pietrzak-Flis, Z. and Wardaszko, T. (2001).** Tritium in surface waters, tap water, and in precipitation in Poland during the 1994-1999 period. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 247(1): 71-77.
- Raskob W., Barry P. (1997).** Importance and variability in processes relevant to environmental tritium ingestion dose models. *Journal of Environmental Radioactivity, Environmental Tritium*, 36, 237-251.
- Rapport « article 21 de la Loi transparence et sécurité nucléaire » – CEA Marcoule (2008)**
- Rapport « article 21 de la Loi transparence et sécurité nucléaire » – CEA Saclay (2007, 2008)**
- Rapport « article 21 de la Loi transparence et sécurité nucléaire » – CEA Cadarache (2007, 2008)**
- Rapport « article 21 de la Loi transparence et sécurité nucléaire » – ILL (2007, 2008)**
- Réal, A., S. Sundbell-Bergman, et al. (2004.).** «Effects of ionising radiation exposure on plants, fish and mammals: relevant data for environmental radiation protection.» *J. Radiol. Prot.* 24: A123-A137.
- Renaud Ph. et R. Gurrarian (2009).** Réflexion sur l'évolution des concentrations en radionucléides artificiels dans l'environnement français, les doses associées et l'adaptation des techniques d'analyse aux besoins de la surveillance. *Radioprotection*, vol. 44, N°2.
- Revina, V.S., Voronin, V.S., Lemberg, V.K., Sukhodoev, V.V. (1984).** Comparative study of the blastomogenic effect of chronic exposure to tritium oxide and external γ -radiation. *Radiobiologiya*, 24 (5), pp. 697-700.

- Rodgers D (1986).** Tritium dynamics in juvenile trout, *Salmo gairdneri*. *Health Phys.*, 50(1):89-98.
- Rönnbäck, C. (1983).** Effects on foetal ovaries after protracted, external gamma irradiation as compared with those from internal deposition. *Acta Radiologica Oncology* 22, 465-471.
- Saintigny, Y., S. Roche, et al. (2008).** «Homologous recombination is involved in the repair response of mammalian cells to low doses of tritium.» *Radiat. Res.* 170: 172-183.
- Sanchez-Cabeza, J.A., Pujol, L., Merino, J., Bruach, J.M. and Molero, J. (2000).** Artificial radionuclides in waters of the lower section of the river Ebro (Northeast Spain). *Water, Air, and Soil Pollution*, 118: 339-356.
- Satow, Y., Hori, H., Lee, J.Y., Ohtaki, M. Sawada, S., Nakamura, N., and Okada, S. (1989).** Effect of tritiated water on female germ cells: mouse oocyte killing and RBE. *International Journal of Radiation Biology*, 56(3), 293-299.
- Seyama, T., Yamamoto, O., Kinomura, A., Yokoro, K. (1991).** Carcinogenic effects of tritiated water (HTO) in mice: in comparison to those of neutrons and gamma-rays. *Journal of radiation research*, 32 Suppl 2, pp. 132-142.
- Spalding, K.L., Bhardwaj, R.D., Buchholz, B.A., Druid, H., Frisen, J. (2005).** Prospective birth dating of cells in humans *Cell* 122,1: 133-143.
- Sparrow, A.H., Schairer, L.A., Woodwell, G.M. (1965).** Tolerance of *Pinus rigida* trees to a ten-year exposure to chronic gamma irradiation from cobalt-60. *Radiation Botany* 5, 7-22.
- Strack S., Bonotto S. et Krichmann R. (1980).** Radioactive Contamination of the Marine Environment: Uptake and Distribution of ³H in *Dunaliella bioculata*. *Helgoländer Meeresunters.* 33: 153-163.
- Strack S., Kirchmann R., Luttke A. et Bonotto S. (1983).** Selective accumulation of organically bound tritium in the marine unicellular algae *dunaliella bioculata* and *Acetabularia mediterranea*. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, 34:865-869.
- Strack S., Diabate S., Raskob W. (2005).** Organically bound tritium in plants : Insights gained by long-term experience in experimental and modelling research. *Fusion science and technology*, 48 (Proceedings of the Seventh International Conference on Tritium Science and Technology, No7, Baden-Baden , Allemagne (12/09/2004)), 767-770.
- Strand, P. and C. Larsson (2001).** Delivering a Framework for the protection of the environment from ionizing radiation. *Radioactive Pollutants impacts on the Environment*, Aix-En-Provence, EDP Sciences, Les Ulis
- Straume, T. and A. Carsten (1993).** «Tritium radiobiology and relative biological effectiveness.» *Health Physics* 65: 657-672.
- Shultz, H. D. and M. Zabel (2000).** *Marine Geochemistry*. Berlin, Heidelberg, New-York, Springer-Verlag.
- Sun, X.Z., Inouye, M., Yamamura, H. and Fukui, Y. (1997).** Effects of prenatal treatment with tritiated water on the developing brain in mouse. *International Journal of Radiation Biology*, 71(3), 309-313.
- Suyama, I., H. Etoh, et al. (1981).** «Effects of ionizing radiation on the early development of *Oryzias* eggs.» *J. Radiat. Res.* 22: 125-133.
- Thorne M. (2003).** Parameterisation of Animal Models. Rapport MTA/P0022/2003-1: Issue 3. Rapport diffusé au groupe de travail EMRAS - TRS 274 de l'AIEA.
- Tort, V., Lefaure, C., Linden, G. and J., H. (1997).** Le tritium dans le milieu aquatique et le risque associé. *Radioprotection*, 32(4): 501-519.
- Tritium et environnement – Fiche radionucléide – IRSN**
- Ueda, S., Kakiuchi, H., Kondo, K. and Inaba, J. (2006).** Tritium concentration in fresh, brackish and sea-water samples in Rokkasho-Village, Japan, bordered by nuclear fuel cycle facilities. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 267(1): 29-33.
- UNSCEAR (1993).** Sources effects of ionizing radiations, Rapport à l'assemblée générale.
- UNSCEAR (1996).** Sources and effects of ionizing radiation.A/AC.82/R.549. Report to the general assembly with scientific annex, United Nations, Vienna.
- UNSCEAR (2000).** Source and effects of ionizing radiation. Vol. 1 : sources. Rapport à l'assemblée générale,
- Unterweger M. P., Lucas L. L. (2000).** Calibration of the National Institute of Standards and Technology tritiated-water standards. *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 527-531.
- Velarde M., Perlado M. (2001).** Tritium gas and tritiated water vapour behaviour in the environment from releases into the atmosphere from fusion reactors. *Fusion Engineering and Design*, 58-59, 1123-1126.
- Velarde M., Perlado M., Sedano M. (2006).** Behaviour of three chemical forms of tritium in the environment after release from inertial fusion reactors. *J. Phys. IV France*, 133, 849-851.
- Vray F., Salaun G. (2003).** Dispersion des rejets atmosphériques tritiés de Valduc : approche utilisant le marquage des feuilles de chênes dans l'environnement du site. *IRSN Rapport DP/RE/SERNAT/2003-12*.
- Villa M; and G. Mangon (2004).** Low-level measurements of tritium in water, *Applied radiation and Isotopes* (61) (2-3), pp. 319-323.
- Wang, B., et Zhou, X-Y. (1995).** Effects of prenatal exposure to low-dose beta radiation from tritiated water on the neurobehaviour of mice. *Journal of Radiation Research*, 36, 103-111
- Wierczinski B., Müllen G., Türler A. (2005).** Tritium enrichment in the hydration sphere of humic substances. *Fusion Science and Technology*, 48, 783-786.
- Williams J, Russ RM, McCubbin D, and Knowles JF (2001).** An overview of tritium behaviour in the Severn Estuary (UK). *Journal of Radiological Protection* 21:337-344.
- Woodhead, D.S. (1977).** The effects of chronic irradiation on the breeding performance of the guppy, *Poecilia reticulata* (Osteichthyes : Teleostei). *International Journal of Radiation Biology* 32, 1, 1-22.
- Xiang, Y. et al., (2007).** Radioactivity monitoring in environmental water and air around QNPP. *Nuclear Science and Techniques*, 18(5): 316.
- Yankovich T.L., Kim S.B., Baumgärtner F., Galeriu D., Miyamoto K., Saito M. et Siclet F. (2006).** EMRAS Tritium/C14 Workgroup : the dynamic Perch Lake mussel transplantation scenario – Modelled-to-measured comparison. AECL ETB Technical Memorandum n° ETB-06-270 (rev.0).
- Yankovich T.L., Koarashi J., Kim S.B. et Davis P.A. (2008).** International study on the validation of models for the environmental transfer of tritium and carbon-14. *Appl. Radiat. Isotopes*, 66: 1726-1729.
- Yokoyama S., Noguchi H., Ichimasa Y., Ichimasa M. (2004).** Re-emission of heavy water vapour from soil to the atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*, 71, 201-213
- Zolotova, A.I., Shcherbakov, V.K. (1987).** Differential radiosensitivity of *Triticum monococcum* and *Triticum sinkajae* to chronic and acute gamma radiation. *Radiobiologiya* 27, 1, 62-68.

ANNEXE 1

Légende des boîtes à moustache. Lorsque nécessaire, la moyenne a été ajoutée (indiquée dans la légende des figures)



ANNEXE 2

Les échanges de tritium entre les hydrosystèmes et l'atmosphère s'effectuent principalement selon deux mécanismes : les échanges entre l'eau tritiée de l'hydrosystème et la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère et les apports par les précipitations.

Les apports par les précipitations s'expriment par le produit de l'intensité de la pluie et de l'activité en tritium de l'eau de pluie. Soit :

$$\Theta_{HTO}^{pluie} = v_{pluie} \cdot [HTO]_{pluie}$$

Avec :

Θ_{HTO}^{pluie} est le flux surfacique de tritium dû à la pluie ($Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$)

v_{pluie} est l'intensité de la pluie ($m \cdot s^{-1}$)

$[HTO]_{pluie}$ est l'activité volumique du tritium dans l'eau de pluie ($Bq \cdot m^{-3}$)

Les échanges entre l'eau tritiée d'un hydrosystème et la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère sont essentiellement liés aux processus de diffusion, d'évaporation et de condensation à l'interface de ces deux milieux. Bien qu'il existe quelques études qui ont soulevé la pertinence de ces mécanismes en identifiant des corrélations entre les activités de tritium dans l'atmosphère dans le champ proche d'hydrosystèmes contaminés par des rejets tritiés (Fontugne, Maro *et al.*, 2005 ; Maro, Tenaillon *et al.*, 2005), ces échanges restent à ce jour peu documentés et sont rarement traités dans les modèles de transfert. Les échanges par diffusion s'appliquent en permanence mais sont plus ou moins prépondérants en fonction des conditions de saturation en humidité des couches d'air en contact avec la surface de l'hydrosystème : 1) sous - saturation, 2) saturation et 3) sur - saturation.

Pour des conditions de sous saturation ($e_s > e_a$), les échanges sont essentiellement dus à l'évaporation de la surface d'eau et s'effectuent essentiellement de l'hydrosystème vers l'atmosphère. La modélisation peut alors s'appuyer sur le produit du flux d'évaporation de la nappe d'eau avec l'activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème :

$$\Theta_{HTO}^{evap} = \beta \cdot \Theta_{eau}^{evap} \cdot [HTO]_{hyd}$$

où

Θ_{HTO}^{evap} est le flux de tritium dû à l'évaporation ($Bq \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$)

Θ_{eau}^{evap} est le flux d'eau dû à l'évaporation ($L \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$)

$[HTO]_{hyd}$: activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème ($Bq \cdot L^{-1}$)

β : inverse du facteur de séparation isotopique ($\approx 0,91$) (-)

Le flux d'évaporation d'une surface d'eau dépend de la température, de la pression atmosphérique, de la vitesse du vent et de l'écart entre les pressions de vapeur et de vapeur saturante de l'air. La formulation de Rohwer est souvent utilisée (Fontugne, Maro *et al.*, 2005 ; Maro, Tenaillon *et al.*, 2005) :

$$\Theta_{eau}^{evap} = 0.372 \cdot (1 - 0.000374 \cdot Pa) \cdot (1 + 0.6 \cdot u_{vent}) \cdot (e_s - e_a)$$

où

Pa est la pression atmosphérique (mbar)

u_{vent} est la vitesse du vent ($m \cdot s^{-1}$)

e_s est la pression de vapeur saturante d'eau dans l'air (mbar)

e_a est la pression de la vapeur d'eau dans l'air (mbar)

A la saturation ($e_s = e_a$), le bilan des flux hydriques entre l'atmosphère et l'hydrosystème est nul. Les échanges de tritium s'effectuent principalement par diffusion en fonction du gradient des concentrations de tritium dans l'eau de l'hydrosystème et dans la vapeur d'eau de l'atmosphère.

$$\Theta_{HTO}^{diff} = v_e \cdot ([HTO]_{atm} - [HTO]_{hyd})$$

où

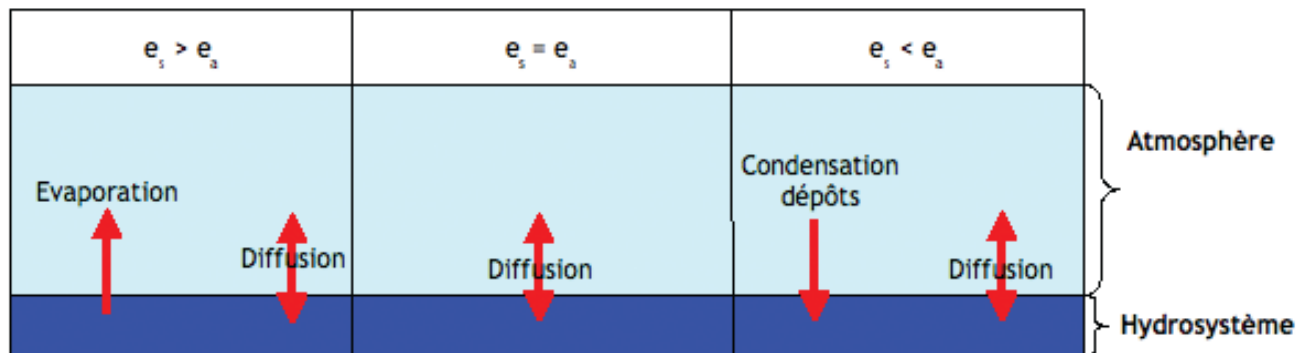
Θ_{HTO}^{diff} est le flux de tritium par diffusion ($Bq \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$)

v_e est la vitesse d'échange du tritium entre l'atmosphère et l'hydrosystème ($m \cdot j^{-1}$)

$[HTO]_{hyd}$ est l'activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème ($Bq \cdot L^{-1}$)

$[HTO]_{atm}$ est l'activité de tritium de la vapeur d'eau dans l'atmosphère ($Bq \cdot L^{-1}$).

Pour des conditions de sur-saturation ($e_s < e_a$), les mécanismes de transfert de l'atmosphère à l'hydrosystème (condensation de la vapeur d'eau de l'air, interception des gouttelettes d'eau à la surface de l'hydrosystème) peuvent jouer un rôle prépondérant. En plus des flux par diffusion, la modélisation doit aussi tenir compte de la cinétique de formation des gouttelettes d'eau et de leur vitesse de dépôt à la surface.



ANNEXE 3

Bien que les flux d'eau vers les sédiments puissent, dans certains cas, constituer la principale source de contamination des hydrosystèmes (Bolsunovsky and Bondareva, 2003), ils sont traités par les modèles de transfert qui s'intéressent la plupart du temps à l'activité massique ou surfacique des sédiments secs. Pourtant, les sédiments sont constitués d'eau et de particules solides et l'activité massique de ce mélange n'est pas nulle dès lors que du tritium se trouve dans l'eau interstitielle. On a alors :

$$[HTO]_{sed} = \frac{[HTO]_{its} \cdot n}{\rho_w \cdot n + \rho_s \cdot (1 - n)} \quad (Bq \cdot kg_{rais}^{-1})$$

où

$[HTO]_{sed}$ est l'activité massique de tritium dans le sédiment ($Bq \cdot kg_{rais}^{-1}$)

$[HTO]_{its}$ est l'activité volumique de tritium dans l'eau interstitielle ($Bq \cdot m^{-3}$) n est la porosité du sédiment (-)

ρ_w est la masse volumique de l'eau ($kg \cdot m^{-3}$)

ρ_s est la masse volumique des particules solides ($kg \cdot m^{-3}$)

Les variations de $[HTO]_{its}$ dépendent principalement de deux types de mécanismes : la diffusion interstitielle à l'interface de la colonne d'eau et du sédiment (échanges diffusifs), et les échanges avec la nappe (Θ_{HTO}^{nappe}).

$$\Theta_{HTO}^{its} = v_{its} \cdot ([HTO]_{its} - [HTO]_{hds}) + \Theta_{HTO}^{nappe}$$

où

v_{its} est la vitesse d'échange avec l'eau interstitielle (m.s⁻¹)

$[HTO]_{hds}$ est l'activité massique de tritium dans la colonne d'eau (Bq.m⁻³)

Θ_{HTO}^{nappe} est le flux entre l'hydrosystème et la nappe (Bq.m⁻².s⁻¹)

Soumis à la nature des sols (poreux, fracturés, imperméables...) et aux conditions d'écoulements du fait des gradients de pression et de la perméabilité des milieux, les échanges avec la nappe sont complexes à modéliser. De ce fait, ils sont généralement appréhendés de façon empirique et parfois sur la base de mesures de tritium.

Pour les échanges diffusifs, la vitesse v_{its} dépend des vitesses d'échange de l'hydrosystème (v_{hds}) et du sédiment (v_{sed}) à leur interface :

$$v_{its} = \frac{v_{hds} \cdot v_{sed}}{v_{hds} + v_{sed}}$$

• v_{hds} , peut être déduit de plusieurs formulations. A titre d'exemple, on citera la relation suivante (Higashino et al., 2004) :

$$v_{hds} = \frac{3 \cdot \sqrt{3}}{2 \cdot \pi} \cdot 0,1 \cdot \left(\frac{v_w}{D_m} \right)^{\frac{2}{3}} \cdot u^* \approx 10^{-4} \cdot u$$

où

u^* est la vitesse de frottement de l'écoulement (m.s⁻¹)

u est la vitesse moyenne de l'écoulement (m.s⁻¹)

v_w est la viscosité cinématique de l'eau (10⁻⁶ m².s⁻¹)

D_m est le coefficient de diffusion moléculaire du tritium ($\approx 10^{-9}$ m².s⁻¹)

• v_{sed} correspond au ratio de D_{sed} , le coefficient de diffusion de la couche superficielle du sédiment, sur h_{sed} , l'épaisseur de cette couche (entre quelques mm et quelques cm).

$$v_{sed} = \frac{D_{sed}}{h_{sed}} \approx \frac{10^{-9} \cdot n}{h_{sed} \cdot (1 - \ln(n^2))}$$

D_{sed} (m².s⁻¹) est le coefficient de diffusion moléculaire au sein de la couche superficielle du sédiment. Il peut être relié à n , la porosité de cette couche (Shultz and Zabel, 2000).

ANNEXE 4

L'incorporation sous forme organique de tritium libre de l'eau dans les tissus des organismes exposés est le résultat de différents processus, dont la photosynthèse et la croissance. Le traitement de ces phénomènes est indispensable pour une modélisation correcte des transferts du tritium aux organismes vivants. Cette approche a notamment été appliquée par Myamoto et al. (1995), qui ont représenté les organismes comme

une somme de deux compartiments, l'un correspondant au TFWT, échangeant avec le milieu extérieur, et l'autre à l'OBT, formé à partir du TFWT. Deux types de modélisation correspondant à cette situation, l'une à l'équilibre et l'autre dynamique sont présentées ci-dessous.

Modélisation à l'équilibre. En supposant un régime permanent, les organismes sont immergés dans un environnement d'activité constante en HTO. Concernant la synthèse biologique de tritium organique lié à partir du tritium libre de l'eau, il est alors raisonnable de supposer que l'activité d'OBT dans leur eau de combustion est identique à l'activité de HTO dans le milieu, corrigée par un facteur traduisant cet équilibre.

La première approche est classiquement l'application d'un facteur de concentration équivalent, traduisant la mise à l'équilibre de la teneur en OBT dans l'organisme par rapport à l'activité de HTO dans le milieu, de par l'équation :

$$[OBT]_{organisme} = CF_{organisme} \cdot [HTO]_{wat} \quad \text{Équation 1}$$

où

$[OBT]_{organisme}$ est l'activité d'OBT dans l'organisme (Bq.kg⁻¹) ;

$CF_{organisme}$ est le ratio $[OBT]_{organisme} / [HTO]_{wat}$ (l.kg⁻¹ ; 0,6 plantes aquatiques ; 0,45 animaux aquatiques ; Kirchmann et al, 1979).

$[HTO]_{wat}$ est l'activité de HTO dans le milieu

La deuxième approche (Davis et al, sous presse) consiste à appliquer un facteur de partition à l'activité de HTO dans l'eau. Ce facteur tient compte de la présence d'hydrogène échangeable dans l'eau de combustion et de la discrimination isotopique dans les échanges eau-organismes. Sous ces hypothèses, l'activité d'OBT formé à partir d'HTO est estimée dans le poisson frais par l'équation 2.

$$[OBT]_{fish} = (1 - H_{fish}) \cdot WEQ_{fish} \cdot PF_{fish} \cdot [HTO]_{wat}$$

Équation 2

où

$[OBT]_{fish}$ est l'activité d'OBT (fraction non échangeable) dans le poisson frais (Bq.kg⁻¹ frais) ;

WEQ_{fish} est le facteur équivalent en eau du poisson (kg d'eau produit par kg de matière sèche brûlée, moyenne géométrique 0,65) ;

PF_{fish} est le facteur de partition relatif au poisson (s.d., moyenne géométrique 0,66).

Modélisation dynamique. La modélisation dynamique de la formation d'OBT à partir de HTO est traitée différemment selon que l'organisme est végétal ou animal. Ainsi, Galeriu et al (2005) ont proposé un modèle pour les producteurs primaires, et plus particulièrement le phytoplancton, qui repose sur une approche expérimentale.

$$\frac{d[OBT]_{phpl}}{dt} = 0,4 \cdot \mu \cdot Dryf_{phpl} \cdot 0,001 \cdot [HTO]_{wat}(t) - \mu \cdot [OBT]_{phpl}(t)$$

Équation 3

où

$[OBT]_{phpl}(t)$ est l'activité d'OBT (fraction non échangeable) du phytoplancton à l'instant t (Bq.kg⁻¹ frais) ;

0,4 est le coefficient stœchiométrique adimensionnel ;

μ est le taux de croissance du phytoplancton (j⁻¹) ;

$Dryf_{phpl}$ est la fraction de masse sèche du phytoplancton (s.d., complément à 1 de la teneur en eau) ;

0,001 est le coefficient de conversion d'unité des Bq.l⁻¹ en Bq.m⁻³.

La contamination des animaux aquatiques résulte de l'ensemble des voies de transfert de tritium (voie directe et voie trophique). Différentes approches peuvent être adoptées pour déterminer l'activité du tritium organique lié dans les animaux.

Pour les poissons, Ciffroy *et al* (2006) ont retenu de considérer la contamination par ingestion d'eau comme prédominante, l'activité d'OBT dans l'animal étant déterminée par un taux de transfert entre l'eau et l'organisme ainsi que par une constante d'élimination biologique.

$$[OBTsp]_{fish}(t) = [OBTsp]_{fish}(t-1) \cdot e^{-\lambda_{bio, fish} \cdot \Delta t} + CF_{fish} [HTOsp]_{wat}(t) \cdot (1 - e^{-\lambda_{bio, fish} \cdot \Delta t})$$

Équation 4

où

$[OBTsp]_{fish}(t)$ est l'activité spécifique d'OBT dans le poisson au temps t ($Bq \cdot g^{-1} H$) ;

$[HTOsp]_{wat}(t)$ est l'activité spécifique de HTO dans l'eau brute au temps t ($Bq \cdot g^{-1} H$) ;

$\lambda_{bio, fish}$ est la demi-vie biologique de l'OBT dans le poisson (5 à $10 j^{-1}$) ;

CF_{fish} est le facteur de transfert HTO_{eau} -OBT_{poisson} ($0,45 l \cdot kg^{-1}$; Kirchmann *et al*, 1979).

L'activité d'OBT dans les poissons est alors obtenue par l'équation :

$$[OBT]_{fish}(t) = (1 - H_{fish}) \cdot \omega_{fish} \cdot [OBTsp]_{fish}(t)$$

Équation 5

où

ω_{fish} est la concentration en hydrogène dans la matière organique du poisson (55 à $85 g H \cdot kg^{-1}$ de matière sèche)

Galeriu *et al* (2005) ont développé une autre approche prenant en compte simultanément de l'apport à partir de la nourriture et de l'eau, quel que soit l'organisme aquatique considéré :

$$\frac{d[OBT]_{organism, x}}{dt} = a_x \cdot [OBT]_{food, x}(t) + b_x \cdot [HTO]_{wat}(t) - \lambda_{bio, x} [OBT]_{organism, x}$$

Équation 6

où

$[OBT]_{organism, x}(t)$ est l'activité d'OBT (fraction non échangeable) dans l'organisme de l'animal x à l'instant t ($Bq \cdot kg^{-1}$ frais) ;

a_x est le coefficient de transfert de l'OBT entre l'animal x et sa nourriture (j^{-1}) ;

$$a_x = (1 - SAR_x) \cdot \lambda_{bio, x}$$

SAR_x est le ratio entre activité spécifique en OBT de l'animal x et activité spécifique en HTO de l'eau

$\lambda_{bio, x}$ est la demi-vie biologique de l'OBT dans l'animal x (j^{-1}) ;

$[OBT]_{food, x}(t)$ est l'activité massique d'OBT dans la nourriture de l'animal x à l'instant t ($Bq \cdot kg^{-1}$ frais) ;

$$[OBT]_{food, x} = \sum_{i=1}^n [OBT]_{prey, i} \cdot P_{prey, i} \cdot \frac{Dryf_{pred}}{Dryf_{prey}}$$

où

n est le nombre de proies consommées ;

$[OBT]_{prey, i}$ est l'activité massique d'OBT dans la proie i ;

$P_{prey, i}$ marque la préférence du prédateur (animal x) pour la proie i ;

$Dryf_z$ est la fraction de masse sèche de l'organisme z (complément à 1 de la teneur en eau) ;

b_x est le coefficient de transfert de HTO présent dans l'eau en OBT dans l'animal x ($l \cdot kg^{-1} j^{-1}$) ;

$$b_x = 0,54 \cdot 10^{-6} \cdot SAR_x \cdot Dryf_x \cdot \lambda_{bio, x}$$

Les paramètres de l'équation 6 ont été déterminés pour un certain nombre d'organismes (Galeriu *et al*, 2005 ; Tab.7.2).

Tableau 7.2 : valeurs des paramètres SAR et $\lambda_{bio, x}$ (d'après Galeriu *et al*, 2005)

Organismes	SAR (source HTO)	$\lambda_{bio, x}$ (j^{-1})
Zooplankton	0.4 ± 0.1	0.3
Mollusques	0.3 ± 0.05	0.02 pour 1 g de chair 0.005 pour 30 g de chair
Crustacés		0.007
Poissons planctonivores	0.25 ± 0.05	Peu ou pas de données 10 - 25 jours
Poissons piscivores		

Concernant le taux de perte biologique des poissons, Galeriu *et al* (2005) ont suggéré l'emploi d'un modèle métabolique incluant deux composantes : la dilution par la croissance et les pertes métaboliques au sens strict. Cette approche conduit à l'expression suivante de la demi-vie biologique :

$$\lambda_{bio, x} = c \cdot E \cdot C_a \cdot W^{C_b} \cdot F_c(T)$$

Équation 7

où

c est la fraction du taux maximum d'alimentation journalier ($g \cdot g^{-1} j^{-1}$)

E est l'efficacité nette d'assimilation

C_a , C_b sont les coefficients traduisant l'influence du poids sur le métabolisme

W est le poids de l'organisme

F_c est l'effet de la température sur le métabolisme, dépendant de T qui est la température de l'eau

La définition et le dimensionnement de ces paramètres tels que donnés par Galeriu *et al* (2005) ne sont pas suffisamment précis pour permettre par exemple une vérification de l'équation aux dimensions. Par ailleurs, l'attribution de valeurs à chacun de ces paramètres suppose leur disponibilité dans la « littérature » ou leur acquisition dans le cadre d'une étude spécifique à un site. La mise en œuvre de ce modèle métabolique est donc difficilement généralisable.

Origine du tritium, modes de gestion, techniques de piégeages, réduction à la source

Sommaire

- 111 Rejets de tritium des CNPE d'EDF (EDF)
- 116 Deuterium and Tritium: The fuel of ITER (ITER)
Le Deutérium et le Tritium :
le combustible d'ITER (ITER)
- 120 Le tritium dans les déchets des réacteurs
d'EDF en cours de démantèlement (EDF)
- 125 Le tritium issu des activités de recyclage
de combustibles usés d'AREVA NC de
La Hague : origine, modes de gestion
et évaluation de technologies de piégeage en
vue de réduire les rejets (AREVA)
- 137 Detritiation Systems at ITER (ITER)
Les systèmes de détritiation d'ITER (ITER)
- 147 Retour d'expérience du procédé
de détritiation de Valduc (CEA)
- 149 Retour d'expérience sur la gestion
des déchets et rejets tritiés (CEA)
- 155 Entreposage des déchets tritiés sans exutoire de
filière : synthèse du dossier d'orientation (CEA)
- 157 Le tritium en stockage de déchets radioactifs :
l'impact sur l'environnement (ANDRA)

Rejets de tritium des CNPE¹ d'EDF

Bernard Le Guen, Vincent Chrétien, Pierre-Yves Hémidy
EDF

1 | Introduction

La communauté internationale est aujourd'hui confrontée à une hausse de la consommation d'électricité dans le monde, estimée à 60% d'ici 2030 d'après l'Agence Internationale de l'Energie, et à la nécessité de lutter contre l'effet de serre dans un environnement énergétique marqué par un prix du pétrole durablement élevé du fait de l'épuisement attendu des gisements d'hydrocarbures. La lutte contre le réchauffement climatique va par ailleurs de plus en plus contraindre les pays à privilégier les énergies qui n'émettent pas de CO₂, notamment dans la production d'électricité. Dans ce cadre, un nombre croissant de pays estiment que l'énergie nucléaire peut constituer une réponse aux besoins énergétiques futurs, et 25 réacteurs nucléaires sont actuellement en construction dans le monde et 220 projets sont à l'étude.

Les rejets de tritium issus de la fourniture d'électricité d'origine nucléaire s'ajoutent à une production d'origine naturelle et aux quantités importantes encore présentes attribuables aux essais militaires aériens réalisés dans les années soixante. Compte tenu de la faible radiotoxicité du tritium, associée au fait qu'il n'existe pas aujourd'hui de méthode industrielle de piégeage du tritium dans les conditions de production des Centres Nucléaires de Production d'Électricité (CNPE), le tritium produit est intégralement rejeté dans le milieu récepteur. Ces rejets, maîtrisés, surveillés et comptabilisés, se font dans le strict respect des autorisations, et n'induisent pas d'impacts significatifs sur l'homme et le milieu naturel.

Cette publication a pour objet de présenter comment se forme le tritium produit par les CNPE, les quantités rejetées et les actions engagées par EDF pour optimiser ces rejets et en surveiller les impacts.

2 | Origine et formation du tritium dans les CNPE

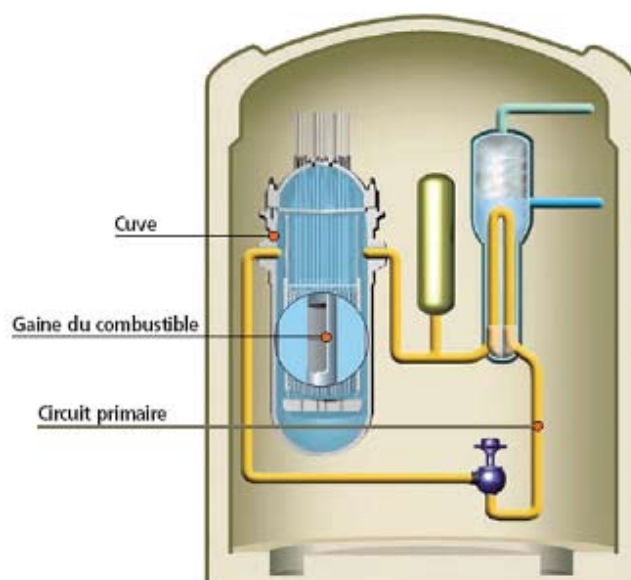
Dans les réacteurs nucléaires à eau sous pression comme ceux du parc nucléaire d'EDF en France (58 réacteurs ou « tranches » en exploitation), le tritium se forme principalement par fission dans le combustible (Figure 1). Mais ce tritium reste confiné en quasi-totalité dans la gaine du combustible sous forme d'hydrides métalliques, en raison de sa forte affinité pour le zirconium constituant la gaine du combustible, et représente au final moins de 0,01% du tritium rejeté par les CNPE.

Les composants de l'eau du circuit primaire constituent l'autre source de production du tritium. Le tritium s'y forme par activation du bore 10 utilisé comme modérateur de la réaction nucléaire (86 % de la production de tritium dans le circuit primaire), et par activation du lithium 6 (14% de la production de tritium dans le circuit primaire), du lithium 7 ainsi que du deutérium.

Enfin dans les CNPE des paliers 1300 MW et 1450 MW, des grappes sources secondaires, utilisées pour la surveillance de la réactivité du cœur en phase de rechargement de combustible et en phase sous critique du réacteur, sont à l'origine de 20 à 40 % de production supplémentaire de tritium dans le circuit primaire.

C'est donc principalement le tritium produit par activation dans le circuit primaire qui se retrouve dans les effluents et donc dans les rejets autorisés d'effluents radioactifs liquides et gazeux des CNPE.

Figure 1 : Schéma du circuit primaire et zoom sur la gaine du combustible. Source EDF.



¹ Centre Nucléaire de Production d'Électricité.

3 | Rejets de tritium des CNPE

Les rejets de tritium des CNPE sont effectués conformément aux autorisations de rejets, spécifiques à chaque site. Ils représentent moins de 3 g.an⁻¹ (1,0.10¹⁵ Bq.an⁻¹) dans les rejets d'effluents liquides et un peu moins de 0,1 g.an⁻¹ (3,4.10¹³ Bq.an⁻¹) dans les rejets d'effluents gazeux pour l'ensemble des 58 tranches du parc d'EDF en exploitation en France.

Les rejets moyens de tritium par tranche sont variables suivant le palier de puissance du réacteur (900, 1300 et 1450 MW).

En effet, la production de tritium est liée :

- à la quantité d'énergie produite,
- à des paramètres de conception (présence de grappes sources secondaires par exemple, sur les paliers 1300 et 1450 MW),
- au taux d'enrichissement du combustible utilisé,
- à la durée des cycles de fonctionnement entre deux arrêts pour rechargement du combustible (de 12 à 18 mois suivant les tranches).

Tableau 1 : Rejets moyens de tritium liquide par tranche en 2008.

Palier	Nombre de tranches	Rejets moyens de tritium liquide en TBq/an par tranche	Limites réglementaires de rejets de tritium liquide en TBq/an par tranche
900 MW	34	11	20 à 40
1300 MW	20	27	30 à 50*
1450 MW	4	27	40 à 45*

* La limite haute correspond à l'utilisation de combustible à Haut Taux de Combustion (HTC). Ce type de combustible ne sera finalement déployé que dans un seul réacteur, sur le CNPE de Nogent en 2010.

Tableau 2 : Rejets moyens de tritium gazeux par tranche en 2008.

Palier	Nombre de tranches	Rejets moyens de tritium gazeux en TBq/an par tranche	Limites réglementaires de rejets de tritium gazeux en TBq/an par tranche
900 MW	34	0,2	2
1300 MW	20	0,8 ²	2,5 à 4
1450 MW	4	0,3	2,5

4 | Actions entreprises pour limiter les rejets de tritium et leurs impacts

En raison des volumes d'effluents importants contenant des activités volumiques très faibles, il n'existe pas aujourd'hui de technique industrielle adaptée au piégeage du tritium dans les effluents radioactifs liquides des CNPE.

Cependant, EDF poursuit ses recherches pour limiter les rejets de tritium.

Ainsi, la production du tritium dans le circuit primaire des centrales à eau sous pression étant, comme nous l'avons vu, en majeure partie due à l'activation du bore 10, EDF a étudié les possibilités de substitution de cet élément chimique.

En effet, le bore est présent dans le circuit primaire sous forme d'acide borique B(OH)₃, dont la concentration est ajustable pour permettre de suivre les variations de réactivité pendant le cycle de fonctionnement du réacteur entre deux rechargements de combustible. Ainsi, sa concentration varie de 1500 à 1700 ppm au moment de la divergence du réacteur au redémarrage de la tranche, pour se stabiliser autour de 1000 à 1100 ppm à pleine puissance en début de cycle. Cette concentration diminue ensuite à raison de 3 à 4 ppm par jour pour tendre vers 0 ppm en fin de cycle.

Le bore a été choisi comme modérateur neutronique car il dispose d'une bonne section efficace microscopique (760 barn). Cependant l'utilisation d'autres produits chimiques en substitution au bore a été évaluée par EDF.

Ces produits doivent vérifier a minima les 5 critères suivants :

- **Critère 1** : l'acide borique jouant un rôle primordial dans la maîtrise de la réaction neutronique et donc de la réactivité d'un réacteur nucléaire de puissance, la sélection d'un produit de substitution doit reposer principalement sur son caractère neutrophage.
- **Critère 2** : les substances retenues doivent être solubles, et être physiquement et chimiquement stables dans toutes les conditions de fonctionnement du circuit primaire.
- **Critère 3** : les substances retenues ne doivent pas engendrer, par activation neutronique dans le circuit primaire, de produits radiotoxiques susceptibles de mettre en cause l'estimation des conséquences radiologiques, la radioprotection ou le dimensionnement des bâtiments nucléaires et des systèmes de traitement des effluents.
- **Critère 4** : l'emploi des substances retenues ne doit pas présenter un danger pour l'intégrité de l'installation. On doit tout particulièrement étudier les effets de corrosion provoqués par les substances retenues sur les matériaux du circuit primaire.
- **Critère 5** : l'emploi des substances retenues doit être moins dangereux que l'acide borique pour la sécurité et la santé des travailleurs.

L'application successive de ces 5 critères aux éléments chimiques neutrophages candidats (cadmium, dysprosium, erbium, europium, gadolinium, hafnium, indium, iridium, samarium), n'a permis de sélectionner aucun élément chimique ou aucune substance dérivée de ces derniers qui ne satisfasse

parfaitement tous les critères exigés pour le remplacement de l'acide borique. Il en a été conclu par EDF qu'en l'état actuel des connaissances, le remplacement de l'acide borique dans le circuit primaire des CNPE, et la réduction de la production de tritium en découlant, était techniquement irréalisable.

Par ailleurs, EDF étudie également les meilleures techniques disponibles (MTD) pour limiter l'impact de ses rejets de tritium.

Des études ont ainsi été réalisées afin d'examiner la possibilité de réduire l'activité en tritium rejetée sous forme liquide, par l'utilisation de la décroissance radioactive par stockage dans des bâches. Mais cette solution aurait nécessité des quantités de stockage telles qu'elle n'aurait pu se faire à un coût raisonnable. Elle aurait par ailleurs engendré des risques supplémentaires, pour un gain dosimétrique négligeable.

Ensuite une action importante d'optimisation des rejets de tritium sous forme gazeuse a récemment pu être réalisée. Elle est partie du constat que les rejets de tritium gazeux étaient beaucoup plus importants sur les CNPE du palier 1300 MW que sur les sites des autres paliers (900 et 1450 MW). L'origine de cette différence a été identifiée en 2005 sur le site de Cattenom où il a été démontré qu'une part importante du tritium gazeux provenait de l'évaporation dans des bâches de traitement des effluents du circuit primaire. Une campagne de modification a été lancée sur l'ensemble des CNPE du même palier afin de réduire l'évaporation dans ces bâches par la diminution du débit de ventilation. Ces modifications se sont achevées fin 2008 et commencent à montrer des résultats positifs.

² NB : Sur ce palier, une modification va permettre de réduire les rejets gazeux.

³ L'estimation de l'impact dosimétrique dépend du site, du fait notamment de la prise en compte des habitudes alimentaires de la population du groupe de référence et de la dispersion/dilution atmosphérique des rejets dans le milieu récepteur (notamment pour les sites dits à orographie complexe comme Paluel, Penly ou encore Flamanville), et des conditions météorologiques.

Cette diminution des rejets gazeux de tritium est d'autant plus bénéfique que l'impact dosimétrique des rejets de tritium est plus important sous forme gazeuse que liquide. A titre d'exemple, pour le site de Paluel³, comportant 4 réacteurs de 1300 MW, la dose efficace reçue par le public est de l'ordre de 9,8 nano-sievert pour un rejet annuel de 1,0 TBq de tritium gazeux, contre 0,034 nano-sievert pour le groupe de référence non-pêcheur (0,071 nano-sievert pour le groupe pêcheur) pour un rejet de 1,0 TBq de tritium liquide.

Cet impact dosimétrique plus important des rejets gazeux de tritium, a poussé EDF à faire le choix de minimiser les rejets de tritium gazeux, en privilégiant les rejets de tritium par voie liquide.

Cela s'est traduit par la rédaction, en 2007, d'une doctrine de gestion du tritium, qui vise à :

- Réduire au maximum les rejets de tritium par voie atmosphérique et rejeter préférentiellement ce radionucléide par voie liquide.
- Déconcentrer le tritium du circuit primaire en cas de fuite entre les circuits primaire et secondaire pour limiter le transfert du tritium vers le circuit secondaire.
- Eviter la dissémination du tritium dans les bâches ou piscines en arrêt de tranche en réalisant une dilution du circuit primaire en fin de cycle.

5 | Surveillance du tritium dans l'environnement autour des CNPE

Chaque année, dans le cadre de la surveillance réglementaire de l'environnement réalisée en routine par EDF autour de ses CNPE, près de 20 000 mesures de tritium dans les eaux sont réalisées (sur des prélèvements d'eaux de mer, de rivière, de pluie, d'eaux souterraines) ainsi que près de 800 mesures de tritium atmosphérique.

Figure 2 : Prélèvement dans l'environnement. Source EDF.



Depuis février 2009, toutes les mesures de tritium sont réalisées selon les normes internationales en vigueur pour ce radionucléide par des laboratoires agréés par l'ASN selon la norme ISO 17025 (référentiel adopté par l'ASN dans le cadre du Réseau National de Mesure). Ces données figurent dans les registres réglementaires mensuels aux côtés de nombreuses autres mesures de radioactivité de l'environnement et seront disponibles et accessibles au public sur le site Internet du Réseau National de Mesure dès janvier 2010 (sur <http://www.mesure-radioactivite.fr>).

Parallèlement, et en complément des mesures réglementaires, EDF fait réaliser des mesures de tritium dans le cadre de ses suivis radioécologiques annuels depuis 1992. Ces mesures sont confiées à des laboratoires extérieurs et à l'IRSN. Les mesures réalisées concernent les différents compartiments du milieu récepteur. En complément, il convient de noter qu'EDF a récemment décidé d'ajouter des mesures de tritium organique sur des matrices végétales et animales dans ce cadre. Enfin, tous les 10 ans, des bilans décennaux viennent compléter et approfondir les suivis radioécologiques annuels en mettant l'accent sur des radionucléides à demi-vie longue, difficilement ou non détectés en spectrométrie gamma comme le tritium organiquement lié (Figure 3).

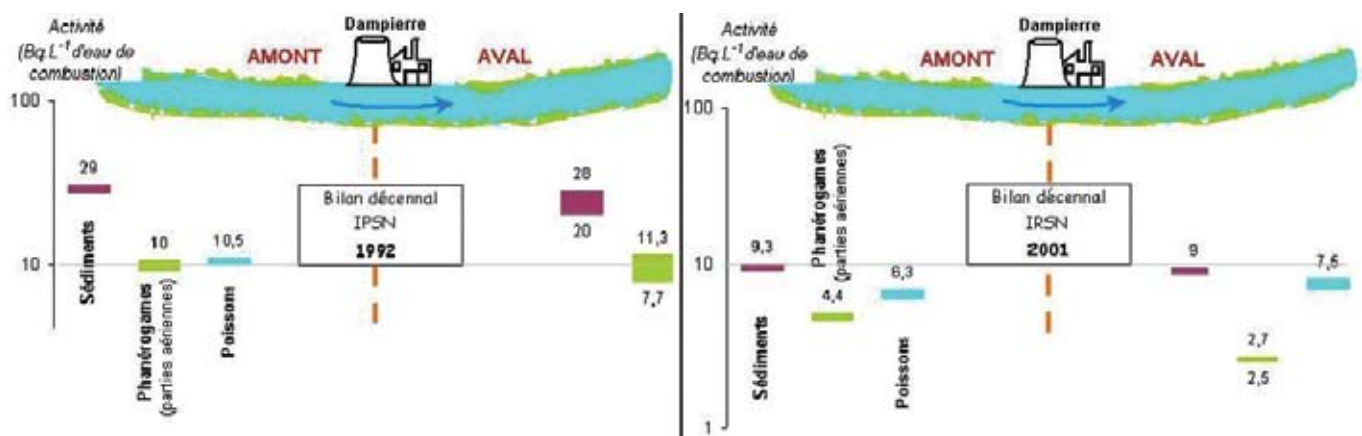
Optimisés au cours du temps, les suivis et bilans radioécologiques réalisés ont une double fonction d'étude et de suivi, dans le temps et dans l'espace. Ils visent à évaluer de façon fine les activités des radionucléides naturels et artificiels d'origines diverses (essais militaires atmosphériques, Tchernobyl, ...) que l'on peut trouver dans les différents compartiments des écosystèmes terrestres et aquatiques dans le but d'avoir une image représentative de la radioactivité autour des installations d'EDF. Les données issues de ces études figurent dans le rapport annuel de suivi de l'environnement qui est accessible au public sur simple demande.

Ces mesures montrent que l'influence des rejets de tritium gazeux des CNPE n'est pas perceptible dans l'écosystème terrestre. Les activités mesurées restent très proches de celle de la vapeur d'eau atmosphérique mesurée en l'absence de toute influence industrielle. Ainsi, les activités en tritium libre sont actuellement de l'ordre de quelques becquerels par litre dans le lait et les végétaux.

Dans les cours d'eau, du fait des rejets autorisés d'effluents radioactifs liquides, l'influence des rejets tritiés des CNPE d'EDF est perceptible, en particulier en Loire et dans les rivières à faibles débits (Vienne, Meuse, Moselle, Seine). Le tritium dans l'eau libre des végétaux aquatiques peut y atteindre transitoirement plusieurs dizaines de becquerels par litre si le prélèvement est réalisé au moment d'une opération de rejet d'un réservoir d'effluents radioactifs.

Dans les sédiments, on constate dans certains cours d'eau, en amont comme en aval des installations, des activités en tritium organique plus élevées que dans les autres compartiments. Les teneurs maximales ont été observées dans le Rhône en amont de Creys-Malville et dans le Rhin en amont de Fessenheim avec des activités de 3000 Bq.L⁻¹ à 8000 Bq.L⁻¹ d'eau de combustion. L'hypothèse d'un marquage par des composés organiques tritiés utilisés dans l'industrie horlogère (cadres lumineux) pourrait expliquer ces observations.

Figure 3 : Evolution des mesures entre deux bilans décennaux. Source EDF [4].



Le long des côtes françaises de la Manche, les mesures de tritium dans l'eau libre des algues mettent en évidence que les rejets des CNPE en Manche (Flamanville, Paluel, Penly, Gravelines) contribuent certes au niveau observé, mais représentent une faible part des rejets tritiés en Manche. Ces activités varient de l'ordre de 15 Bq.L^{-1} à Flamanville à 3 Bq.L^{-1} à Gravelines (influence de l'éloignement de La Hague). Les activités dans la matière organique des organismes marins des eaux normandes sont du même ordre de grandeur que celles dans l'eau, en cohérence avec des rejets industriels sous forme d'eau tritiée (HTO).

Les activités en tritium dans les eaux marines de la zone dite OSPAR (zone maritime correspondant approximativement aux eaux côtières européennes de l'Atlantique du nord et du nord-est, à l'exception de la mer baltique), atteignent des niveaux de l'ordre du becquerel par litre dans les zones éloignées des côtes, c'est-à-dire similaires aux activités d'origine naturelle.

6 | Interprétation des mesures des différentes formes de tritium dans l'environnement autour des CNPE

Dans l'environnement, le tritium des CNPE est majoritairement rejeté sous forme d'eau tritiée (HTO) [1]. Sous cette forme, il peut à la suite de réactions métaboliques complexes comme la photosynthèse être incorporé à des composés organiques. Ainsi l'activité spécifique de la matière organique, exprimée en nombre d'atomes de tritium par rapport au nombre d'atomes d'hydrogène, ou en becquerel de tritium par gramme d'hydrogène, va tendre vers celle de l'eau.

Ce tritium organiquement lié (OBT pour Organically Bounded Tritium) peut ensuite être transféré à d'autres compartiments de l'écosystème via la chaîne alimentaire.

La mesure du tritium libre (HTO) dans l'eau extraite des végétaux fournit ainsi une valeur ponctuelle, image de la concentration dans l'eau ou dans l'air ambiant au moment du prélèvement.

La mesure du tritium lié à la matière organique (OBT) des végétaux incorporés lors de la photosynthèse et par les animaux permet, quant à elle, d'avoir une information rétrospective sur l'activité moyenne en tritium de l'eau ou de l'air sur toute la période de formation de la matière organique.

Ainsi, les observations effectuées sur le terrain confirment sur les mesures de tritium HTO et OBT que le tritium ne se « concentre » pas isotopiquement, comme le montrent les mesures réalisées sur les végétaux et les animaux des écosystèmes aquatiques en Manche depuis une dizaine d'année [2].

Enfin les expérimentations sur le tritium libre et le tritium organique réalisées sur les végétaux terrestres et aquatiques et sur les espèces animales montrent que le tritium ne se concentre pas non plus dans la chaîne alimentaire [3].

7 | Modélisation et évaluation de l'exposition due au tritium

La dose attribuable au tritium chez l'homme résulte de l'incorporation d'eau tritiée et de molécules organiques tritiées. En comparaison avec l'eau tritiée, l'exposition au tritium gaz est négligeable. L'exposition externe est nulle en raison des caractéristiques physiques de ce radionucléide (rayonnement de faible énergie).

En raison de la taille plus grosse de l'atome de tritium par rapport à l'atome d'hydrogène, l'incorporation du tritium à la matière organique

est légèrement inférieure à celle de l'hydrogène. Néanmoins, pour rester majorantes, les différentes modélisations retenues pour calculer l'impact des rejets de tritium des CNPE ne tiennent pas compte de cette différence et considèrent que les atomes de tritium ont exactement le même comportement que les atomes d'hydrogène lors de la photosynthèse.

Sur ces bases, les calculs d'impact dosimétrique sont réalisés en tenant compte des activités rejetées, sous forme liquide et gazeuse, et de différents paramètres liés à l'environnement de chaque site (météorologie, habitudes alimentaires, dispersion/dilution dans le milieu récepteur) et des différentes voies d'exposition pour l'homme comme l'ingestion d'aliments et d'eau ou l'exposition externe. Ainsi pour les CNPE de bord de mer, le modèle prend en compte la consommation des produits marins pêchés dans un rayon de 500 mètres autour du CNPE et inclut des expositions externes dues à 100 heures par an passées sur la plage et 20 heures par an de baignade avec ingestion d'eau de mer. Le modèle considère d'une part le tritium sous forme d'eau tritiée et d'autre part le tritium incorporé à la matière organique.

Ces évaluations montrent que les rejets de tritium des CNPE d'EDF ne contribuent que de manière marginale (« trivial » au sens de la CIPR⁴) à l'exposition du public. En effet, la contribution du tritium varie entre une dizaine de nano-sievert et quelques centaines de nano-sievert par an [4, 5], suivant les sites et les années, mais reste toujours inférieure à 1 microSv par an (1000 nano-sievert). Cette exposition est bien sûr à comparer avec la limite réglementaire de 1000 microSv par an pour le public et à l'exposition moyenne attribuable à la radioactivité naturelle en France de 2400 microSv par an.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Bernard Le Guen (2008). Impact du tritium autour des centrales nucléaires d'EDF. Revue Radioprotection 2008, volume 43. EDP Science.
- [2] M. Masson, B. Fiévet, P. Bailly-Du-Bois, L. Tenailleau, A. Olivier (2009). Le Tritium en Manche. Journées SFRP sur le tritium, 22 et 23 septembre 2009.
- [3] Y. Belot, M. Roy, H. Métivier (1996). Le tritium de l'environnement à l'homme. Les éditions de physiques, Les Ulis.
- [4] Bilan radioécologique de l'environnement terrestre et aquatique du CNPE de Dampierre-en-Burly (1977-2007), ELIER0800887A.
- [5] B. Le Guen, V. Chrétien, P.Y. Hémidy, M.J. Sagot (2009), Rejets de tritium et impact autour des Centres Nucléaires de Production Électricité d'EDF. Journées SFRP sur le tritium, 22 et 23 septembre 2009.

⁴ Commission internationale de protection radiologique.

Deuterium and Tritium: The fuel of ITER

Le Deutérium et le Tritium : le combustible d'ITER

Carlos Alejaldre,
Deputy Director General for Safety and Security - ITER

1 | Introduction

Nuclear fusion of light nuclei (Deuterium-Tritium) is one of the very few options potentially acceptable from the environmental, safety and economic points of view, to provide energy over the long term for a growing world population. In the past few decades, fusion research has made great progress. Advances in fusion science arising from a large set of fusion experiments worldwide, together with the development of key fusion technologies, have provided the international fusion programme with the necessary body of knowledge required to demonstrate the scientific and technological feasibility of fusion power for peaceful purposes. The International project ITER, under construction near Cadarache in the southeast part of France, is an experimental installation designed to provide the definitive demonstration that the dream may become reality.

2 | A new fuel for a new energy source: Deuterium and Tritium

One original feature of this type of nuclear fusion facility is its fuel, made of a very low-density mixture of isotopes of hydrogen: nuclei of deuterium and tritium fully ionized in a plasma state. Another is that for the fusion reactions to be efficient from an energy point of view, the plasma must be at a temperature of the order of several tens of keV which means a few hundred million degrees Celsius (1 keV ~ 10 000 000° C).

The principle of ITER is to maintain the fusion fuel, a hot gas called "plasma", in a doughnut-shaped vessel ("torus") from touching the walls by means of strong magnetic fields created by superconducting coils surrounding the vessel, commonly called the "vacuum chamber". This configuration, which has proven the superior design for fusion experiments since the 1960s, is called a **tokamak**.

1 | Introduction

La fusion nucléaire des noyaux légers (deutérium-tritium) est l'une des très rares solutions potentiellement acceptables en termes environnementaux, économiques et de sûreté pour fournir de l'énergie à long terme à une population mondiale qui ne cesse de croître. La recherche sur la fusion a fait des progrès considérables ces dernières décennies. Grâce aux avancées de la science de la fusion, fruit des nombreuses expérimentations sur la fusion réalisées dans le monde entier, et au développement de technologies de fusion essentielles, le programme de fusion international dispose aujourd'hui des connaissances nécessaires pour démontrer la faisabilité scientifique et technologique de l'énergie de fusion à des fins pacifiques. Le projet international ITER, dont les installations sont en cours de construction près de Cadarache, dans le sud-est de la France, vise à démontrer de façon incontestable que ce rêve peut se réaliser.

2 | Le tritium : un nouveau combustible pour une source d'énergie nouvelle

Parmi les caractéristiques originales de ce type d'installation nucléaire figure son combustible, constitué d'un mélange d'isotopes de l'hydrogène à très faible densité : des noyaux de deutérium et de tritium totalement ionisés à l'état de plasma. Autre spécificité, le plasma doit se trouver à une température de l'ordre de plusieurs dizaines de kiloélectron-Volt (keV) ou de quelques centaines de millions de degrés Celsius pour que les réactions de fusion soient efficaces en termes énergétiques (1 keV ~ 10 000 000° C).

Le principe d'ITER consiste à maintenir le combustible de fusion sous forme de gaz chaud (le plasma) dans une chambre en forme d'anneau (« tore ») hors de contact des parois par de puissants champs magnétiques créés par des bobines supraconductrices installées autour de l'anneau, appelée « chambre à vide ». Cette configuration, qui s'est révélée la plus adaptée aux expérimentations de fusion depuis les années 60, est appelée « **tokamak** ».

ITER is a long pulse tokamak that in nominal operation produces a deuterium-tritium fusion power of 500 MW for a burn length of 400 s, with the injection of 50 MW of auxiliary power also called “additional heating”. A pulse has 3 phases: the start-up, the “plateau” and the ramp-down. During plasma start-up, a very low-density gaseous fuel, a fraction of a gram of a mixture of deuterium and tritium, will be introduced into a 1000 m³ vacuum vessel chamber by a gas injection system. The plasma will progress from a circular cross section configuration to an elongated D-shape configuration as the plasma current is ramped up (see D-shape of the vacuum vessel in). As the current develops (nominally up to 15 MA), for reaching the “plateau”, subsequent plasma fuelling (gas or pellets), together with additional heating, leads to a high energy gain burn with a fusion power of about 500 MW. At the end of the pulse the fuelling rate is reduced in order to achieve a slow ramp-down of the fusion power, and the plasma current is ramped down to terminate the burn. The purely inductively driven pulse has nominal burn duration of 400 s, with a pulse repetition period as short as 1800 s. During these 400 s about 0,4g of tritium are used for the fusion reaction.

The products of each fusion reaction are a nucleus of helium, the energy of which (3.5 MeV) will partially heat the plasma in addition to the auxiliary power, and a neutron bearing the energy (14.1 MeV) that will produce heat by collisions in the shielding blankets (also called first wall) which protect the vacuum vessel. This slowing-down process in the blanket has the side effect that when the neutron is captured or interacts with structural atoms, it can activate the material by transmutation of specific atoms, and this process occurs predominantly in the first wall. A second process is that the neutron can interact with lithium in order to produce the tritium needed to feed the fusion plasma. Though this process will not be tested at full scale in ITER; test demonstrations of breeding capabilities will be performed in test modules provided by the Parties under ITER Organization quality control.

ITER est un tokamak à impulsions longues qui, dans des conditions d'exploitation nominales, produit une puissance de fusion deutérium-tritium de 500 MW pour une durée de combustion de 400 secondes, en apportant une puissance de 50 MW appelée « puissance auxiliaire » ou « chauffage additionnel ». Une impulsion a trois phases : le démarrage, le plateau et le ralentissement. Au démarrage du plasma, un combustible gazeux à très basse densité, moins d'un gramme d'un mélange de deutérium et de tritium, est introduit dans une chambre à vide de 1 000 m³ par un système d'injection de gaz. Avec la montée d'intensité du courant de plasma, le plasma évolue d'une configuration à section circulaire vers une configuration en forme de D allongé (voir). Alors que le courant augmente (jusqu'à une valeur nominale de 15 MA) pour atteindre un « plateau », l'alimentation en combustible du plasma se fait par injection de gaz ou de glaçons, complétée par un chauffage additionnel, et aboutit à une combustion à très haut gain énergétique avec une puissance de fusion d'environ 500 MW. À la fin de l'impulsion, le débit d'alimentation en combustible ralentit afin de réduire lentement la puissance de fusion et on abaisse progressivement l'intensité du courant de plasma pour arrêter la combustion. L'impulsion en mode purement inductif présente une durée de combustion nominale de 400 s, avec une période de répétition des impulsions de 1 800 s à peine. Pendant ces 400 s, environ 0,4g de tritium sont utilisés pour la réaction de fusion.

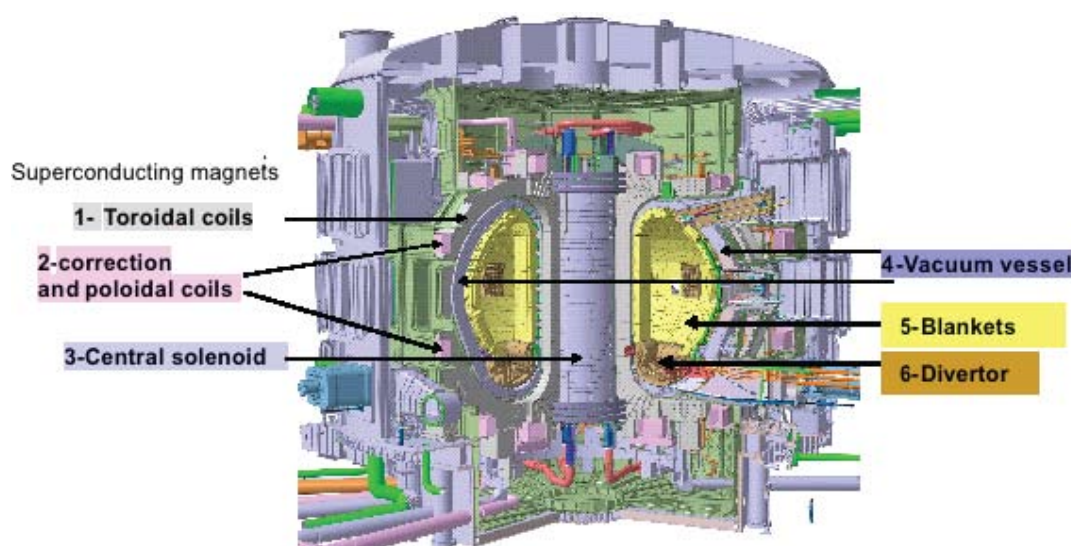
Les produits de chaque réaction de fusion sont un noyau d'hélium, dont l'énergie (3,5 MeV) sera utilisée pour chauffer partiellement le plasma, et un neutron porteur d'énergie (14,1 MeV) qui produira de la chaleur par collisions dans la couverture (appelée aussi « première paroi ». Le processus de ralentissement dans la couverture induit un effet secondaire : quand le neutron est capturé ou interagit avec les atomes des structures, il peut activer la matière par transmutation d'atomes spécifiques, un processus qui se produit essentiellement dans la première paroi. Deuxième processus, le neutron peut interagir avec le lithium pour produire le tritium nécessaire à l'alimentation du plasma de fusion. Ce processus ne sera pas testé à grande échelle dans les installations ITER mais des démonstrations expérimentales des capacités tritigènes seront réalisées dans des modules d'essai fournis par les parties prenantes au projet sous contrôle qualité de l'organisation ITER.

Figure 1: a cutaway view of the ITER device inside the cryostat.

The major components of the tokamak are the superconducting magnets which confine, shape and control the plasma inside the toroidal vacuum vessel. The magnet system comprises toroidal field coils (1), a central solenoid (2), external poloidal field coils, and correction coils (2). The vacuum vessel is a double-walled structure (4). The magnet system and structure, together with the vacuum vessel and internals (5,6), is supported by gravity supports.

Figure 1 : Schéma éclaté du tokamak d'ITER dans le cryostat

Les principaux composants du tokamak sont des aimants supraconducteurs qui confinent le plasma, lui donnent sa forme et le contrôlent à l'intérieur de la chambre à vide de forme toroidale. Le système magnétique comprend des bobines de champ magnétique toroidal (1), un solénoïde central (3), des bobines de champ magnétique poloidal externes et des bobines de correction du champ magnétique (2). L'enceinte sous vide est une structure à double paroi (4). Le système et la structure magnétiques, ainsi que la cuve sous vide et les pièces internes (5, 6), reposent sur des appuis gravitaires.



Using tritium and deuterium as fuel has some interesting consequences, for example there is no possibility of chain reaction, and the fuel has to be fed into the plasma continuously in very small precise amounts, in a similar way to a gas burner. The total amount of fuel confined by the plasma at any moment is only sufficient for a few seconds burn if the supply of fuel is terminated. Too much fuel perturbs the plasma equilibrium and stops also the reaction. In ITER the amount of tritium nuclei inside the tokamak plasma at any one time is a fraction of a gramme.

The fuel nuclear burning rate leading to the amount of tritium and deuterium used is mainly governed by:

- the injection flow rate of deuterium and tritium and the exchange of deuterium and tritium with the first wall
- the temperature, controlled by the heat balance between self-heating by alpha particles (helium nuclei) and the auxiliary heating systems controlled from outside the plasma (neutral beam, Radio Frequency systems...) and
- the density of the plasma, controlled by the fuelling and pumping systems, and limited by processes which depend on the strength of the confining magnetic field.

Any deviation from the nominal parameters would lead either to a rapid termination of the deuterium-tritium fusion, or to a small and limited increase of power. Any pollution from the first wall (dust or impurity ions from sputtering or leaks) will impair the operation of the plasma and stop the fusion reaction. Finally the required vacuum condition necessary for reaching a plasma allowing the fusion reaction to take place is so stringent that any defective leak tightness of the vacuum vessel (first confinement barrier) will anyway make impossible to obtain plasma pulses.

The fusion process would shut down in the case of any deviation from normal plasma conditions, as the occurrence of an abnormal situation in the magnetic field, and would also shut down in case of an abnormal situation in the cooling systems of the first wall, blanket, and divertor.

The tritium gas inventory of ITER is primarily in the tritium fuel cycle, including fuelling, pumping and tritium processing. However, as a result of the choice of materials for the in vessel plasma-facing components, a significant trapped tritium inventory is also expected to accumulate in these components. Overall, a few kilograms of tritium can be present at any time within the ITER plant facilities. As the possibility of tritium breeding is not contemplated in ITER, all tritium will have to be bought in the international market. ITER is consequently an experimental installation where tritium will be used as fuel but it will not be produced for its own consumption in the same way that ITER will not produce electricity.

3 | Safety approach

The main parameters and characteristics of ITER follow directly from the performance objectives (see table 1) and cost targets set by the ITER Parties (China, Europe, India, Japan, Russia, South Korea and United States). The design of ITER reflects in parallel the integration of a safety and environmental approach focused on minimizing the consequences of ITER operation and the integration of the results of postulated events analysis in order to reduce any impact on the population, the environment and the workers.

Table 1 Main Parameters of ITER

Total Fusion Power	500 MW (700 MW)
Q = fusion power/additional heating power	> 10
Average 14MeV neutron wall loading	> 0,5 MW/m ²
Plasma inductive burn time	> 400 s
Plasma major radius (R)	6,2 m
Plasma minor radius (a)	2,0 m
Plasma current (I_p)	15 MA (17 MA)
Toroidal field at 6.2 m radius (B_T)	5,3 T

Note: The machine should be capable of plasma current up to 17 MA, with the parameters shown in parentheses, within some limitations on other parameters such as pulse length.

L'utilisation du tritium et du deutérium comme combustible induit certaines conséquences intéressantes. Par exemple, aucune réaction en chaîne n'est possible, l'alimentation en combustible du plasma doit se faire en continu par très petites quantités, comme dans un brûleur à gaz, et à tout moment, la quantité totale de combustible confiné par le plasma ne permet que quelques secondes de combustion si l'approvisionnement en combustible est interrompu. Dans ITER, la quantité de noyaux de tritium présents dans le plasma du tokamak est constamment inférieure à un gramme.

Le taux de combustion nucléaire du combustible est principalement régi par :

- le débit d'injection de deutérium et de tritium et l'échange de deutérium et de tritium avec la première paroi,
- la température, elle-même régie par le bilan thermique de l'auto-chauffage par les particules alpha (noyaux d'hélium) et des autres systèmes de chauffage contrôlés depuis l'extérieur du plasma (faisceau de neutres (atomes neutres), systèmes à ondes haute fréquence, etc.),
- la densité du plasma, contrôlée par les systèmes d'alimentation en combustible et de pompage, qui est limitée par les processus dépendants de l'intensité du champ magnétique de confinement.

Toute variation des paramètres nominaux aboutira soit à un arrêt rapide de la fusion deutérium-tritium, soit à une augmentation faible et limitée de la puissance produite. Toute pollution provenant de la première paroi (poussières ou ions d'impuretés produits par l'érosion ou par des fuites) compromettra le fonctionnement du plasma. En cas de défaut d'étanchéité de l'enceinte sous vide (première barrière de confinement), il sera impossible d'atteindre l'état de vide nécessaire à la réaction de fusion.

Le processus de fusion sera interrompu en cas de variation des conditions normales du plasma ou en présence d'une situation anormale dans le champ magnétique. Il s'arrêtera aussi en cas de situation anormale au niveau des systèmes de refroidissement de la première paroi, de la couverture ou du divertor.

L'inventaire de gaz tritium d'ITER est essentiellement localisé dans le cycle du combustible tritium, y compris l'injection du combustible, le pompage et le traitement du tritium. Toutefois, en raison des matériaux choisis pour les composants situés face au plasma dans l'enceinte à vide, un inventaire de tritium piégé non négligeable devrait également s'accumuler dans ces composants. Globalement, quelques kilos de tritium pourront être présents à tout moment dans les installations d'ITER. La possibilité de générer du tritium n'étant pas envisagée dans le projet ITER, l'ensemble du tritium devra être acheté sur le marché international. ITER est donc une installation de recherche où le tritium sera utilisé comme combustible mais il n'y sera pas produit pour satisfaire à ses besoins et par ailleurs ITER ne produira pas d'électricité.

3 | L'approche de sûreté

Les principaux paramètres et caractéristiques d'ITER sont directement inspirés par les objectifs de performances techniques (cf. tableau 1) et par les objectifs de coût fixés par les parties prenantes au projet (Chine, Europe, Inde, Japon, Russie, Corée du Sud et États-Unis). La conception d'ITER reflète en parallèle l'intégration d'une approche de sûreté et environnementale visant à minimiser les conséquences de l'exploitation d'ITER et intégrant les résultats de l'analyse des incidents et accidents postulés de façons à réduire leur impact sur la population, l'environnement et les travailleurs.

Tableau 1 : Principaux paramètres d'ITER

Puissance de fusion totale	500 MW (700 MW)
Q = puissance de fusion/puissance de chauffage additionnelle	> 10
Charge neutronique moyenne de 14 MeV sur la paroi	> 0,5 MW/m ²
Temps de combustion du plasma inductif	> 400 s
Grand rayon du plasma (R)	6,2 m
Petit rayon du plasma (a)	2,0 m
Intensité du courant du plasma (I_p)	15 MA (17 MA)
Champ toroidal pour un rayon de 6,2 m (B_T)	5,3 T

Note : la machine doit être capable d'atteindre un courant de plasma de 17 MA avec les paramètres indiqués entre parenthèses, avec certaines limitations pour d'autres paramètres tels que la longueur des impulsions.

Safety principles and criteria for minimizing the consequences to the public and the environment from ITER operations are based on internationally recognized safety criteria and radiological limits following ICRP and IAEA recommendations, and in particular on the concept of ALARA and defense in depth. As the facility will be built in France, a specific adaptation of the design to the French regulations is being performed. ITER is an INB, a Basic Nuclear Installation, “Installation Nuclear de Base” in application of the French nuclear regulation. A Public Inquiry is expected to be conducted in 2010.

The prevention of the release and dispersion of radiotoxic material, e. i. confinement of radioactive inventories, is the main safety function of ITER. The specific ITER inventories at risk are the tritium and the dust produced by plasma/wall interaction in the vacuum vessel. The activated corrosion products in the cooling system have to be addressed as well, mainly for operational radiological exposure. The second main safety function of ITER is the limitation of exposure to internal and external ionizing radiations.

To prevent any significant tritium releases, ITER will be the first tritium facility with full detritiation and tritium recycling capabilities. In normal operation the releases will be optimized through the reduction of inventories on the systems on site, and as the result of an optimization approach in the design through high efficiency systems to recover the tritium for reusing it, as well as the optimization of the procedures of tritiated fluxes during maintenance [1, 2]. So very low gaseous and liquid releases are expected in normal operation. During incidents and accidents the releases to the environment will be very low due to the same confinement systems put in place to protect first the workers and then the public and environment. The doses to the public in all the cases are very low giving less than 10 μ Sv individual dose per year impacting on the nearest population for normal releases.

4 | Conclusion

ITER is the first fusion facility that is fully nuclear and takes advantage of the nuclear burn of tritium as fuel for the production of energy. It is therefore very important for ITER and for the future of fusion power plants, to demonstrate the attractive safety and environmental features of this new nuclear technology.

REFERENCES

- 1-Manfred Glugla. “The detritiation systems at ITER”. White book section IV-2010.
- 2-Pierre Cortes and Lina Rodriguez-Rodrigo. “Optimisation de la gestion du tritium dans le projet ITER. SFRP-2009

Les principes de sûreté et les critères de minimisation des conséquences de l'exploitation d'ITER pour le public et pour l'environnement sont fondés sur des critères de sûreté reconnus au niveau international et sur des limites radiologiques conformes aux recommandations de la CIPR et de l'AIEA, et plus particulièrement sur le principe ALARA et le concept de défense en profondeur. La conception est en cours d'adaptation aux spécificités de la réglementation française car l'installation sera construite en France. ITER est donc une Installation Nucléaire de Base en application de la réglementation nucléaire française. Il est envisagé de tenir une Enquête Publique en 2010.

La prévention des rejets et des dispersions de matières radiotoxiques, donc le confinement des inventaires radiologiques, est la principale fonction de sûreté d'ITER. Les inventaires à risque propres à ITER sont le tritium et la poussière produite par les interactions plasma/paroie dans l'enceinte à vide. Les produits de corrosion activés présents dans le système de refroidissement doivent également être pris en compte, principalement en termes d'exposition radiologique lors de l'exploitation. La deuxième fonction de sûreté d'ITER est la limitation de l'exposition aux radiations ionisantes externes et internes.

Pour prévenir tout rejet de tritium significatif, ITER sera la première installation à consommer du tritium possédant des capacités de détritiation et de recyclage complètes. En exploitation les rejets seront optimisés par la réduction des inventaires in situ, par la conception de systèmes ayant une haute efficacité de collecte des effluents tritiés en vue d'une réutilisation ultérieure et par la mise en place de procédures de gestion des flux tritiés pendant les phases de maintenance [1,2]. De très faibles rejets liquides et gazeux sont donc attendus en fonctionnement normal. En situation incidentelles ou accidentelles les rejets à l'environnement seront très faibles grâce aux systèmes de confinement mis en place en premier lieu pour la protection des travailleurs mais également pour la protection du public. Les doses au public dans tous les cas de figures seront très faibles, conduisant à des valeurs individuelles annuelles inférieures à 10 μ Sv pour les populations les plus proches en conditions normales.

4 | Conclusion

ITER est la première installation de fusion entièrement nucléaire à utiliser la réaction nucléaire du tritium comme combustible pour produire de l'énergie. Il est donc très important, tant pour ITER que pour l'avenir des centrales à fusion, de démontrer les bonnes caractéristiques environnementales et de sûreté de cette nouvelle technologie nucléaire.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- 1-Manfred Glugla. “Les systèmes de détritiation d'ITER”. Livre Blanc du Tritium-Section IV- 2010.
- 2- Pierre Cortes et Lina Rodriguez-Rodrigo. “Optimisation de la gestion du tritium dans le projet ITER. SFRP-2009

Le tritium dans les déchets des réacteurs d'EDF en cours de démantèlement

Marie-Claire Perrin, Bernard Poncet,
Marie-Thérèse Pascal - EDF

1 | Introduction

En 2001, EDF a affiché sa stratégie de démantèlement « immédiat », c'est à dire sans période d'attente pour décroissance radioactive, des installations nucléaires de base arrêtées définitivement. Elle se décline en un programme de déconstruction qui vise à démanteler les installations au plus tôt en intégrant les contraintes techniques, industrielles, administratives et financières.

Ce programme, qui concerne 9 réacteurs et les silos de Saint Laurent A, dans lesquels sont entreposés des éléments en graphite, devrait se dérouler jusqu'en 2035. Il a pour objectif d'évacuer tous les déchets, ou de les valoriser dans des filières agréées, et d'aboutir à un état de propreté des sols et de l'environnement conformes aux exigences de l'ASN et du MEEDDM.

Nous traitons ici de la problématique du tritium dans les déchets issus de ces démantèlements.

2 | Programme de déconstruction des réacteurs arrêtés d'EDF

Le programme de déconstruction des réacteurs arrêtés d'EDF concerne :

- Six réacteurs Uranium Naturel Graphite Gaz (UNGG) : Bugey 1, Chinon A 1, 2 et 3 et Saint Laurent A 1 et 2 (Figure 5 en annexe).
- Un réacteur à eau lourde : Brennilis (Figure 4 en annexe).
- Un réacteur à neutrons rapides (RNR) : Creys-Malville (Figure 6 en annexe).
- Un réacteur à eau pressurisé (REP) : Chooz A (Figure 7 en annexe).

Les combustibles, modérateurs et caloporteurs de ces types de réacteurs sont présentés dans le Tableau 1 ci-dessous.

Tableau 1 : Les différents types de réacteurs en démantèlement.

Centrales	Combustible	Modérateur	Caloporteur
Brennilis	Uranium naturel	Eau Lourde	CO ₂
U.N.G.G.	Uranium naturel	Graphite	CO ₂
Creys-Malville	Uranium enrichi		Sodium
Chooz A	Uranium enrichi	Eau Légère Pressurisée	

Les schémas de principe de ces différents types de réacteurs sont rappelés en annexe.

3 | Source de production de tritium dans les réacteurs

On distingue deux grandes sources de production de tritium dans les réacteurs : la fission ternaire du combustible et l'activation de la matière par un flux de neutrons.

La fission ternaire de l'uranium et du plutonium du combustible est significative pour les réacteurs de Creys-Malville et de Chooz A car les gaines des crayons combustibles sont en acier inox qui laisse diffuser le tritium dans le fluide caloporteur contrairement aux gaines en zircaloy des réacteurs à eau sous pression postérieurs à Chooz A qui le confinent très efficacement.

Cette source de production de tritium existe également dans les réacteurs à eau lourde (Brennilis) et les réacteurs UNGG.

En ce qui concerne l'activation sous flux neutronique, une très grande variété d'éléments chimiques fournit du tritium par activation. Parmi eux, les contributeurs majoritaires sont :

- Le lithium qui est contenu sous forme d'impureté dans le graphite des UNGG ainsi que dans le béton.
- Le bore qui est, comme dans tous les réacteurs à eau sous pression, contenu dans l'eau primaire de Chooz A et dans les barres de commande de tous les types de réacteurs.

4 | Activation et contamination pendant la période de fonctionnement

L'activation des noyaux de la matière est due au flux de neutron intégré sur la période de fonctionnement du réacteur.

Dans le béton soumis au flux neutronique, la présence de traces de lithium induit une production de tritium répartie dans le volume au prorata du nombre de jours équivalents à pleine puissance (Jepp), c'est à dire, de l'énergie thermique produite par le réacteur.

Il en est de même pour le graphite, matériau d'origine naturelle qui comporte à l'état d'impureté du lithium et du bore.

Les barres de commande contiennent par construction du bore pour absorber les neutrons et cette réaction produit du tritium.

Le tritium peut ensuite être déplacé et provoquer de la contamination. Il est en effet transporté par les fluides primaires (eau légère de Chooz A, eau lourde de Brennilis, sodium liquide de Creys-Malville et gaz CO₂ des UNGG), ce qui induit la contamination des circuits traversés par le fluide considéré.

Le transport par diffusion du Tritium peut se produire à travers le béton des réacteurs UNGG ainsi qu'à travers l'acier des circuits, notamment pour le RNR et, dans une moindre mesure, pour les UNGG.

Les cinétiques de transport dans le béton et l'acier sont influencées par les formes chimiques (spéciations) que peut prendre le tritium :

- les deux formes : eau tritiée (HTO) et hydrogène tritié (HT) sont possibles dans le béton,
- la forme hydrogène tritié (HT) est présente sous forme soluble dans l'acier, à l'instar de l'hydrogène.

En conclusion, à Brennilis le tritium est produit majoritairement dans l'eau lourde. Ensuite, le tritium diffuse depuis l'eau lourde vers les canaux combustibles, ce qui entraîne la contamination du circuit CO₂ (cf. le schéma de fonctionnement de Brennilis en annexe).

Dans les UNGG, en plus de la contribution par activation des impuretés dans le graphite et dans le béton, la contamination du circuit CO₂ provient également de la production par fission ternaire du combustible et de l'activation du Bore des barres de commande. Le résultat en est la contamination des circuits baignés par le CO₂.

Dans le RNR, on a également une production par fission ternaire dans le combustible (gaine en inox) et par activation du bore des barres de commande, ce qui induit la contamination du circuit sodium liquide.

Enfin, à Chooz A, la production par fission ternaire du combustible avec gaine en inox, les barres de commande et les crayons sources secondaires induit la contamination de l'eau primaire et de ses circuits.

5 | Quantification de l'inventaire

Pour chaque réacteur, l'inventaire des différents radio-nucléides présents ainsi que l'activité totale de chaque radio-nucléide en Bq sont établis afin de déterminer les filières de déchets les plus adaptées.

Pour quantifier l'activation, le point de départ est toujours constitué par des prélèvements d'échantillons et leurs analyses radio-chimiques. On peut reconstruire, par calcul d'activation à partir des flux neutroniques de l'historique de puissance et de la composition chimique initiale, les

valeurs des activités ayant fait l'objet de mesures. « L'ajustement statistique des impuretés explicatives » permet ainsi une corrélation entre calculs et mesures, on parle aussi d'assimilation de données et d'intervalle de confiance. Cet ajustement statistique autorise l'extrapolation à l'ensemble du matériau pour établir l'inventaire global. A titre d'exemple, les inventaires de tritium des empilements de graphite, comme ceux des autres radio-nucléides, sont calculés à partir de mesures réalisées sur 30 échantillons prélevés par réacteur.

Pour quantifier la contamination labile ou fixée, on procède à une quantification statistique à partir de mesures de différents types, à savoir des évaluations par prélèvements d'échantillons et analyses radio-chimiques :

- Analyse de prélèvements par frottils.
- Mesures par attaque acide sur différentes profondeurs de l'échantillon métallique.

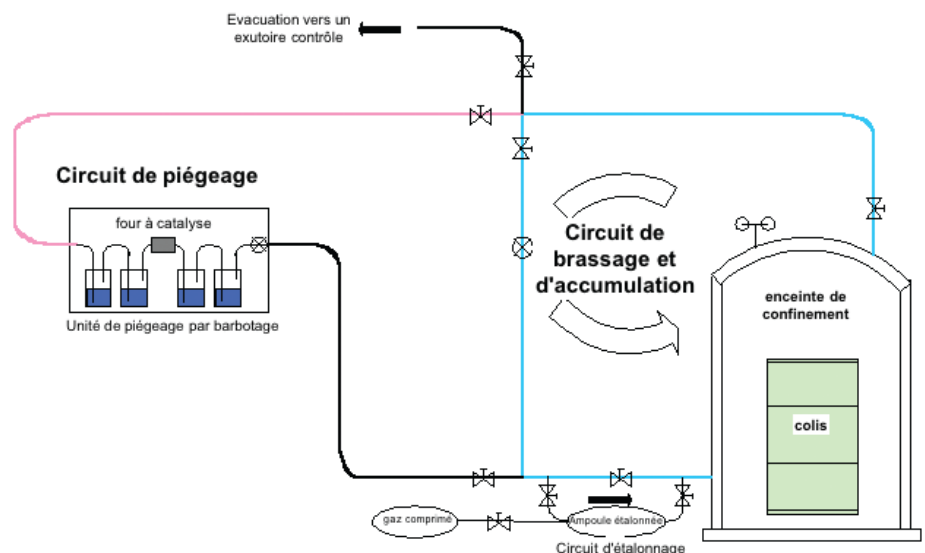
A titre d'exemple, des prélèvements sont réalisés sur des témoins de contamination ayant séjourné dans le réacteur de Creys-Malville pour évaluer la contamination due au tritium (les mesures sont réalisées par attaques à 10 µm et 100 µm de la surface du métal).

6 | Différents impacts sanitaires

La migration du tritium est évaluée pour quantifier son impact radiologique sur le chantier de déconstruction et de conditionnement du déchet et dans les conditions d'exploitation et de fermeture du stockage du déchet.

La mesure du dégazage¹ d'un colis de déchets (cf. Figure 1) permet d'évaluer l'impact radiologique sur le stockage sachant que, par exemple, l'acceptation au Centre de Stockage F-MA de Soulaing (CSFMA) est conditionnée à un seuil de 2 Bq/g/jour de relâchement gazeux. Le principe du test générique consiste à faire circuler de l'air dans une enceinte de confinement contenant le colis et à mesurer le tritium relâché par un système classique de barbotage.

Figure 1 : Mesure de dégazage d'un colis.



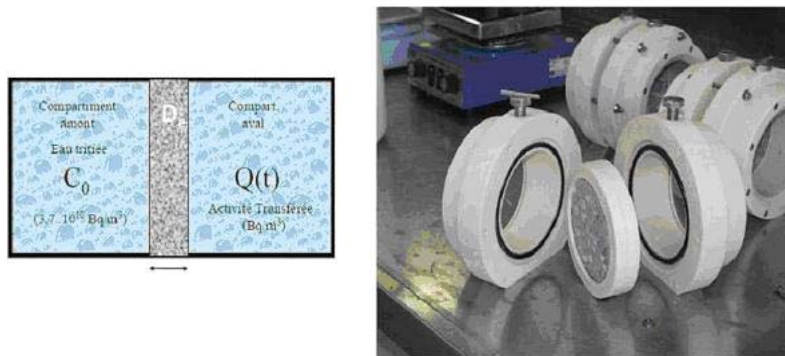
A titre d'exemple, cette démarche a été adaptée pour étudier le relâchement du tritium de colis de pièces en inox ayant séjourné dans le réacteur de Creys-Malville et destinés au CSFMA.

¹ Lorsque le vecteur de migration est l'air, on parle de dégazage. Lorsqu'il s'agit de l'eau, on parle de lixiviation.

En ce qui concerne la diffusion d'eau tritiée ou d'hydrogène tritié dans le béton, la migration du tritium produit par l'activation du lithium est mesurée dans le matériau béton pour évaluer son impact radiologique sur le chantier de démantèlement et dans les conditions d'exploitation et de stockage à long terme du déchet béton. Le principe du test consiste à faire diffuser de l'eau tritiée à travers une lame de béton à analyser en maintenant une eau tritiée à activité volumique constante à l'amont et en renouvelant l'eau à l'aval. On comptabilise ensuite l'activité ainsi récupérée au cours du temps.

L'application des lois de la diffusion permet d'évaluer le coefficient de diffusion à travers la lame de béton (Figure 2) et de faire le calcul prévisionnel de la contamination en tritium susceptible d'avoir migré dans le béton étudié compte tenu des données de production répartie issue de l'activation du lithium.

Figure 2 : Diffusion à travers la lame de béton.

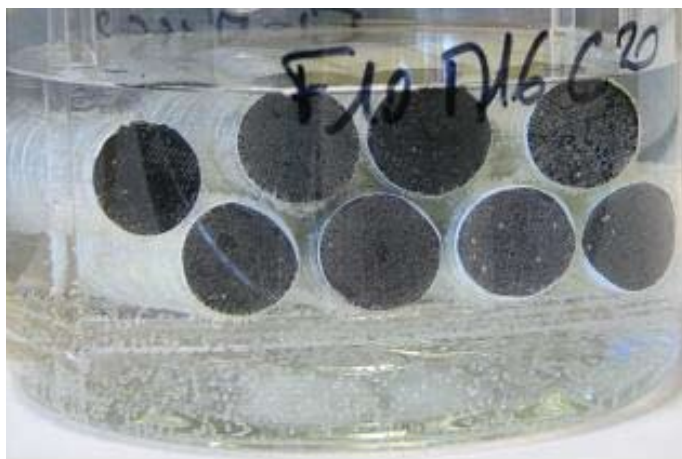


Des modélisations et expérimentations sont en cours avec le CEA. Elles traitent de l'évolution de la saturation et de la diffusion de tritium dans le béton du caisson du réacteur de Bugey 1 sous forme de diffusion liquide (HTO), gazeuse (HTO vapeur ou HT) ou mixte avec une production répartie dans le béton au prorata du flux neutronique et de la concentration en lithium.

La lixiviation du matériau dans l'eau (migration du tritium dans l'eau) est mesurée parce que le démantèlement de quatre UNGG sur les six sera effectué sous eau pour diminuer l'impact dosimétrique des chantiers. En application des spécifications de l'Andra, un déchet conditionné doit vérifier des conditions précises de relâchement maximum dans de l'eau renouvelée (test de lixiviation).

Ainsi, la lixiviation du déchet trempé est étudiée dans l'eau renouvelée en comptabilisant l'activité récupérée au cours du temps. A titre d'exemple, des mesures réalisées sur des carottes de graphite activé sont présentées ci-dessous.

Figure 3 : Carottes graphite pour mesure de lixiviation.



Pour être proche des essais classiques de lixiviation utilisés par l'Andra, le test a été effectué avec, pour milieu retenu pour la lixiviation, de l'eau préfigurant l'eau de démantèlement. Il a été pratiqué un dégazage des carottes avant lixiviation (mise sous vide qui améliore la pénétration de l'eau) pour obtenir les taux de relâchement en condition de démantèlement. Plusieurs résultats montrent un excellent confinement du tritium puisque son relâchement total reste inférieur à 2 millièmes (0,2%) de la quantité initiale.

7 | Répartition des tonnages de déchets selon l'activité en tritium

L'ensemble des résultats disponibles montre qu'une grande partie des déchets (bétons et ferrailles) qui contiennent du tritium est issue des réacteurs UNGG et du RNR. La teneur en tritium de ces déchets se situant entre quelques Bq/g et quelques centaines de Bq/g. Les valeurs les plus élevées sont atteintes pour certaines parties des bétons des caissons des réacteurs UNGG.

Le graphite contenu dans les 6 réacteurs UNGG (18000 t) a des activités massiques en tritium de l'ordre de 1000 à 10 000 Bq/g.

Les barres de commandes (quelques dizaines de tonnes), entreposées dans les réacteurs, présentent des activités en tritium de l'ordre de 10^7 Bq/g.

8 | Filières de stockage

Les déchets (bétons et ferrailles) sont admissibles dans les stockages en exploitation (CSTFA et CSFMA) au regard des spécifications actuelles des stockages et des résultats de mesures de dégazage obtenus sur différents lots de déchets.

Le graphite relève du futur stockage faible activité et vie longue (FAVL) à faible profondeur, conçu pour maîtriser l'impact à long terme des radio-nucléides à vie longue qu'il contient (carbone 14 et chlore 36) et par conséquent l'impact du tritium.

Les barres de commande relèvent du futur stockage haute activité et vie longue (HAVL) en couches géologiques profondes, en projet. Elles seront entreposées dans une installation dédiée (ICEDA) sur le site de Bugey en attente de l'évacuation vers le stockage HAVL.

9 | Conclusions

Les déchets que produira la déconstruction des 9 réacteurs arrêtés et des silos de Saint Laurent sont caractérisés finement pour établir l'inventaire radiologique et quantifier les relâchements des radio-nucléides mobiles en stockage, comme le tritium.

Les résultats disponibles des évaluations, basées sur des approches expérimentales et théoriques, montrent que les déchets constitués de béton et de ferrailles sont évacuables en stockages de surface au regard des critères actuels d'acceptation dans ces filières.

Les déchets de graphite qui sont les déchets en quantité significative contenant du tritium, sont destinés au futur stockage FAVL dont la conception à faible profondeur permettra de maîtriser l'impact des radio-nucléides à vie longue qu'ils contiennent (carbone 14 et chlore 36), et du tritium.

Figure 4 : Réacteur à eau lourde de type Brennilis.

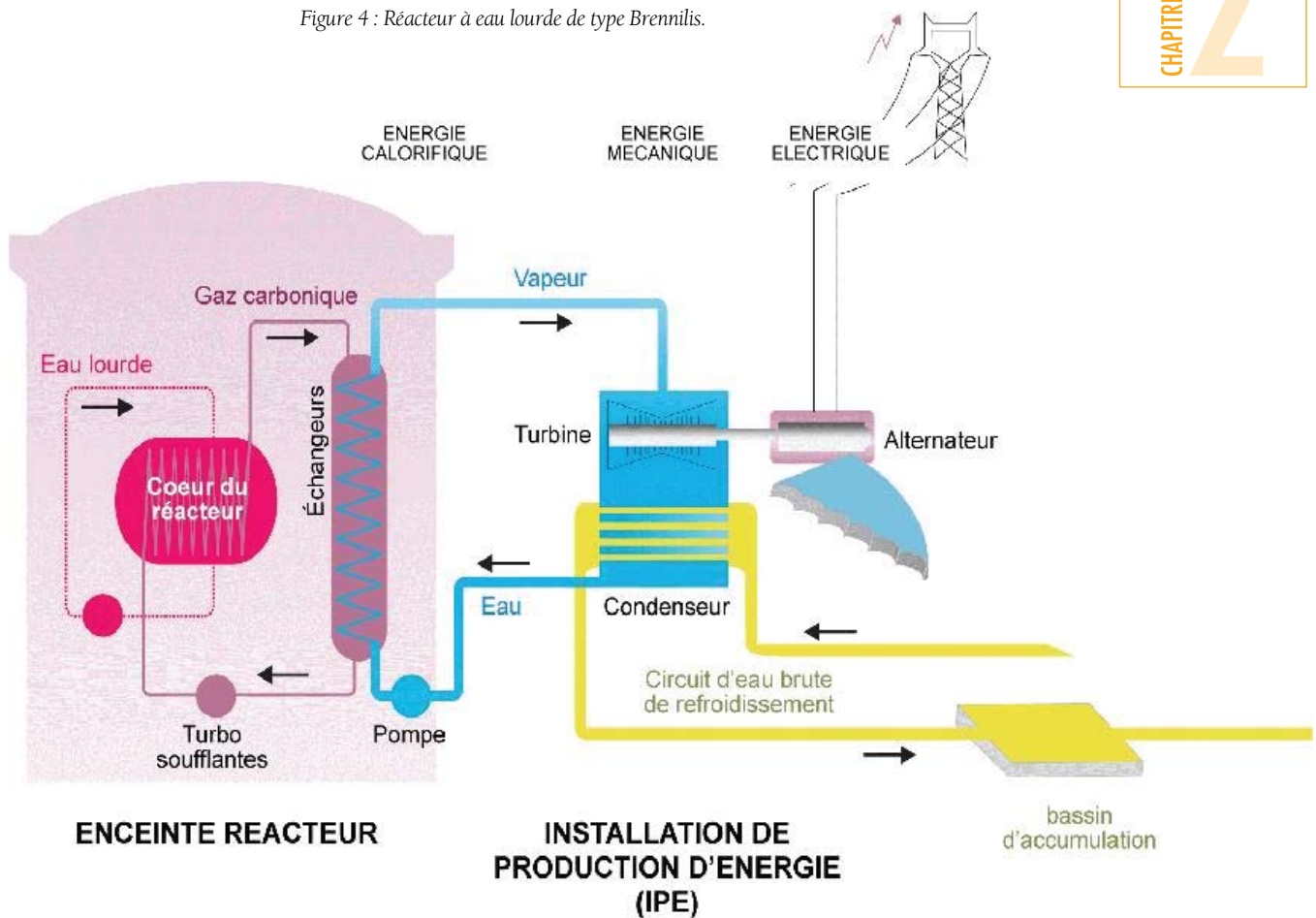


Figure 5 : Réacteur à uranium naturel (UNGG).

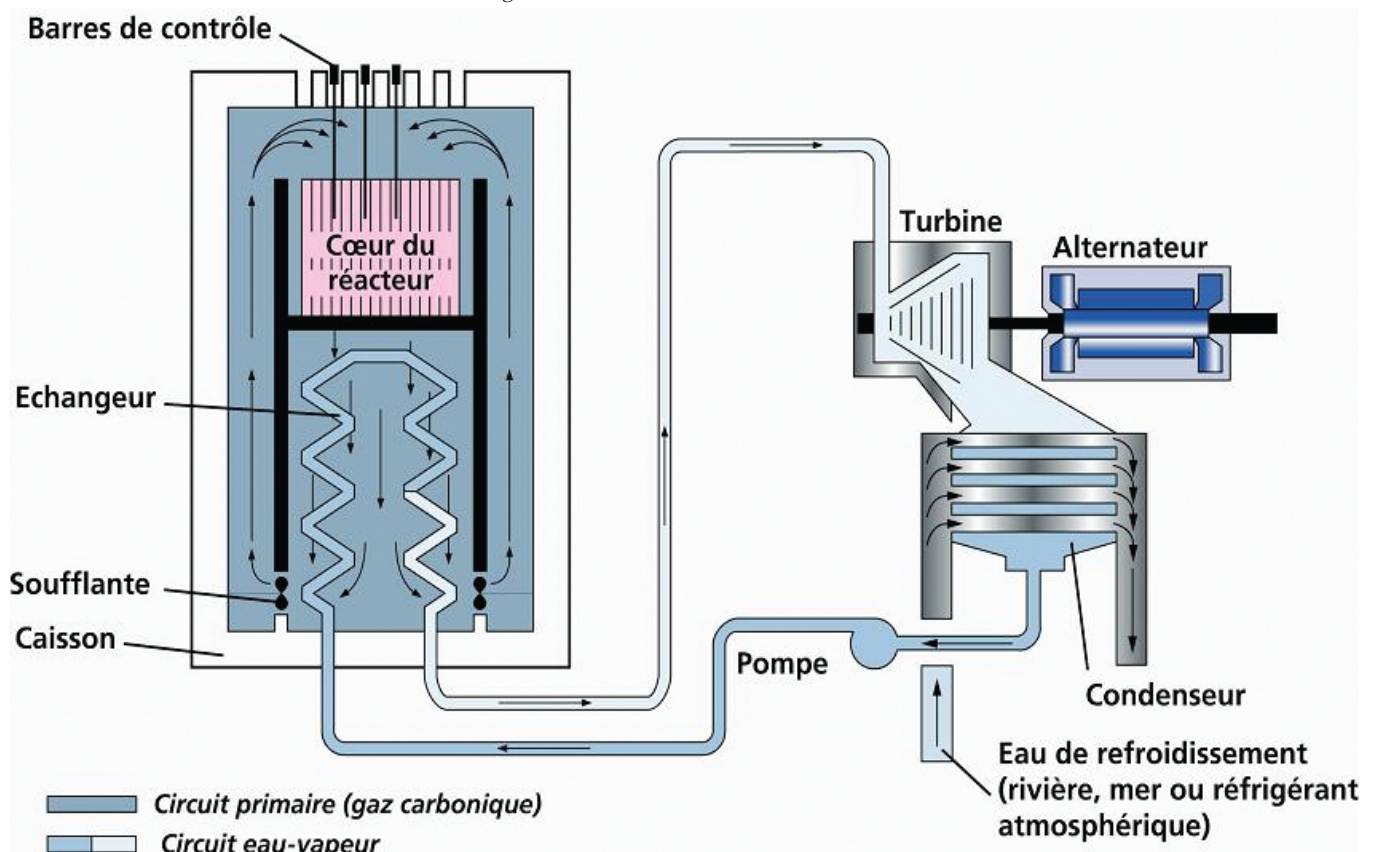


Figure 6 : Réacteur à neutrons rapides (RNR).

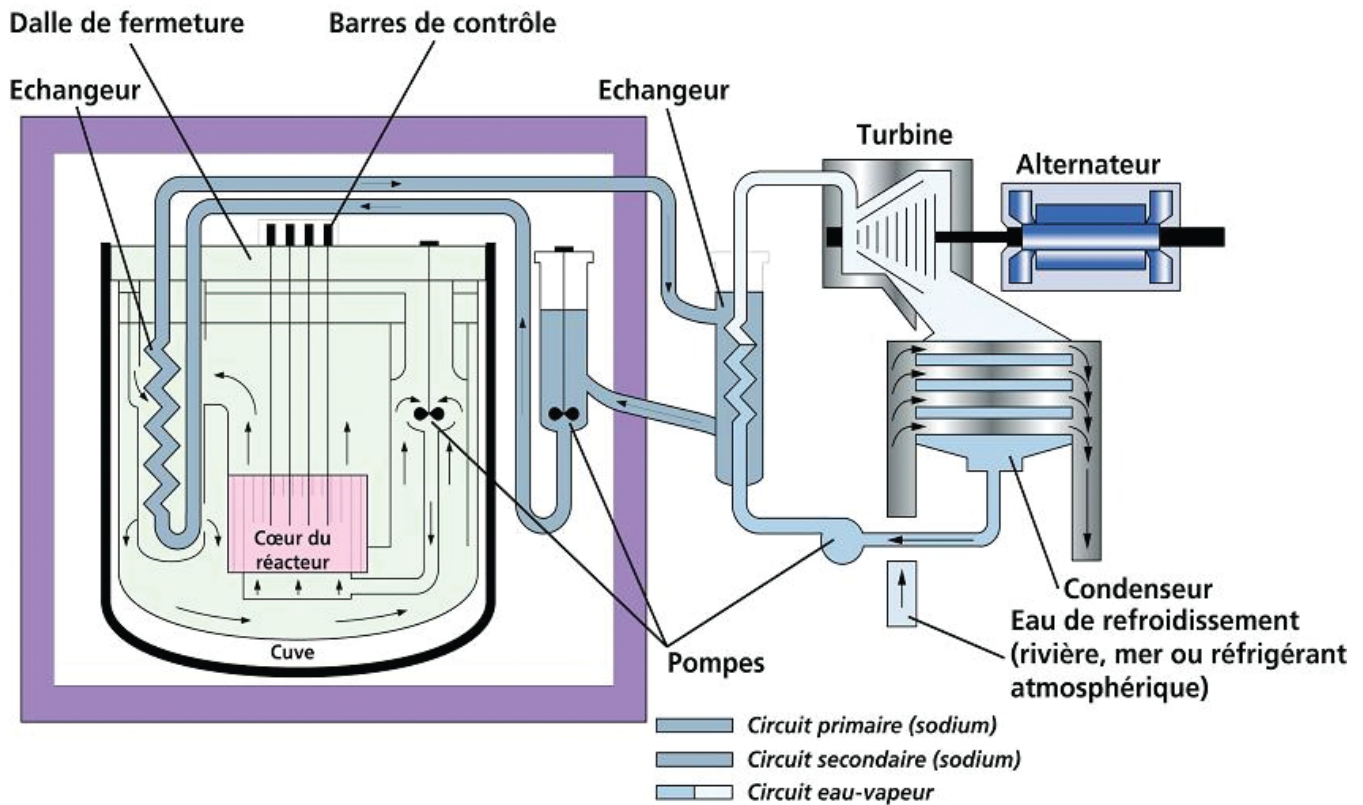
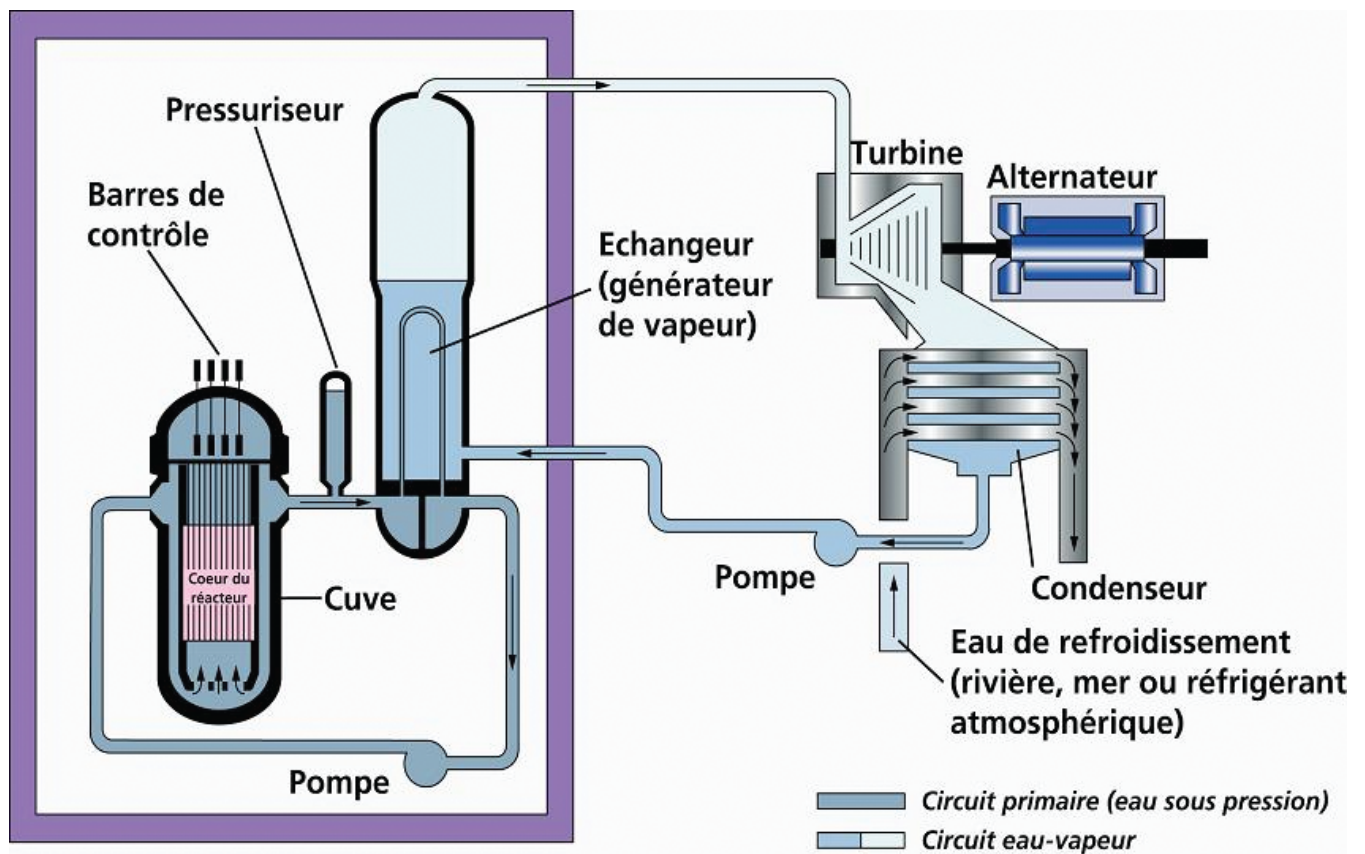


Figure 7 : Réacteur à eau sous pression (REP).



Origine, modes de gestion et évaluation de technologies de piégeage en vue de réduire les rejets Le tritium issu des activités de recyclage de combustibles usés d'AREVA NC La Hague

Patrick Devin¹, Malvina Rennesson²,
Thierry Prévost², Jean-François Valéry²,
¹AREVA
²AREVA NC

Le procédé hydrométallurgique mis en œuvre sur l'usine AREVA NC de La Hague pour le traitement des combustibles irradiés conduit à un rejet de tritium libre, principalement sous forme liquide dans le milieu marin. Cet article apporte dans une première partie des éléments destinés à mieux cerner le comportement du tritium formé dans les combustibles en réacteur, à expliciter son comportement dans le procédé de traitement et à positionner l'impact du mode de gestion en découlant en termes de rejets et d'exposition du public. La deuxième partie est consacrée à un état des lieux des technologies de piégeage et de conditionnement du tritium. Elle inclut également une évaluation de leur applicabilité à l'usine existante dans une approche multicritères.

Du fait de son activité, l'usine AREVA NC de La Hague rejette aujourd'hui de l'ordre de 40 g de tritium par an. Sur la base de la gestion actuelle du tritium (rejet en mer privilégié), celui-ci contribue à hauteur de 0,1 $\mu\text{Sv/an}$ à l'impact dosimétrique annuel total de l'usine, soit moins de 1% de l'impact total. Après analyse des moyens technologiques disponibles, le mode de gestion en vigueur du tritium représente un optimum entre les critères de sûreté, de protection des travailleurs et des riverains, de faisabilité technique et de pertinence économique.

1 | Origine, mode de gestion, rejets et impact du tritium de l'usine AREVA NC La Hague

1.1 | Origine du tritium dans l'environnement

Le tritium est un isotope radioactif de l'hydrogène noté ^3H ou « T ». Son noyau est constitué de deux neutrons et d'un proton. Sa période radioactive est de 12,35 ans (son activité spécifique est de 359 TBq/gramme). Il se désintègre en ^3He en émettant des rayonnements bêta de faible énergie (énergie moyenne : 5,7 keV, énergie maximale : 18,6 keV) [1].

Le tritium présent dans l'environnement a plusieurs origines :

- **La production naturelle** : les atomes de tritium sont essentiellement formés dans les hautes couches de l'atmosphère par action

des rayons cosmiques sur certains composants de l'air. La production annuelle de tritium par cette voie est comprise entre 50.10^3 et 70.10^3 TBq/an (soit entre 150 et 200 g) [9].

- **Production artificielle** : La quantité de tritium d'origine artificielle est la somme de la quantité résiduelle liée aux essais nucléaires passés et de la production actuelle liée aux activités industrielles, de recherche et militaires. La quantité de tritium produite par les essais nucléaires atmosphériques réalisés entre 1945 et 1963 est estimée à 230.10^6 TBq (soit environ 650 kg). En 1990, en raison de la décroissance radioactive du tritium, la quantité résiduelle était de l'ordre de 54.10^6 TBq (soit environ 150 kg) [9] ce qui conduit en 2008 à environ 20.10^6 TBq. Dans les années 90, la quantité annuelle de tritium produite à l'échelle mondiale par les autres sources (réacteurs nucléaires, usines de traitement, laboratoires de recherche, autres applications industrielles et militaires) est évaluée à 21.10^3 TBq (environ 60 g) [9].

1|2| Formation et comportement du tritium dans les réacteurs nucléaires électrogènes et évaluation par les codes de calcul

Le tritium est produit dans les éléments de combustibles nucléaires au cours de leur irradiation dans des réacteurs nucléaires électrogènes, par fissions ternaires directes ou indirectes et, dans une moindre mesure, par des réactions neutroniques sur l'hélium-3 et les autres impuretés du combustible. Il est également formé par activation neutronique d'éléments légers tels le bore-10 ou le lithium-6.

Nota :

- Les fissions des noyaux d'uranium et de plutonium conduisent généralement à la formation de deux noyaux de Produits de Fission lourds « PF », de neutrons qui entretiennent la réaction en chaîne et d'un dégagement d'énergie correspondant à la perte de masse. Néanmoins, dans environ 1 cas sur 10 000, la fission conduit à la formation de trois noyaux, dont un noyau léger de tritium (fission ternaire directe) ou d'hélium-6, qui par capture neutronique suivie d'une désintégration conduit à la formation de tritium (fission ternaire indirecte).

D'après le code de calcul CESAR¹ développé par le CEA sous assurance qualité, dans un combustible irradié à 33 000 MWj/t, la production de tritium se répartit comme suit :

- fission ternaire directe (82,5%),
- formation via le lithium-6 : 11,5% (fission ternaire indirecte et activation d'éléments légers),
- formation via l'hélium-3 (5%) et l'oxygène-16 (1%).

Les rendements de production du tritium augmentent avec le taux de combustion du combustible, de façon non linéaire.

Les quantités de tritium présentes dans le combustible traité dans l'usine AREVA NC de La Hague sont évaluées à l'aide du code de calcul CESAR. La version utilisée actuellement pour l'usine AREVA NC de La Hague est la version 4.38. Dans cette version, la production de tritium via le lithium-6 n'est pas prise en compte. Le rendement de production via cette voie augmente avec le taux de combustion.

Ceci induit :

- la quantité de tritium produite dans le combustible est sous-estimée par le code de calcul CESAR 4.38. Pour un combustible irradié à 33 000 MWj/t, la quantité totale de tritium produite est sous-estimée d'environ 10%,
- cette sous-estimation s'amplifie avec le taux de combustion du combustible.

La version 5 du code CESAR en cours de qualification intègre la production de tritium via le lithium-6. Son utilisation pour l'usine AREVA NC de La Hague est prévue pour 2010.

1|3| Répartition du tritium entre l'oxyde et la gaine

La théorie du comportement du tritium présentée dans ce chapitre a été établie sur la base des études menées en collaboration avec le CEA et corroborées par l'exploitation des rejets en tritium liquide de l'usine AREVA NC La Hague.

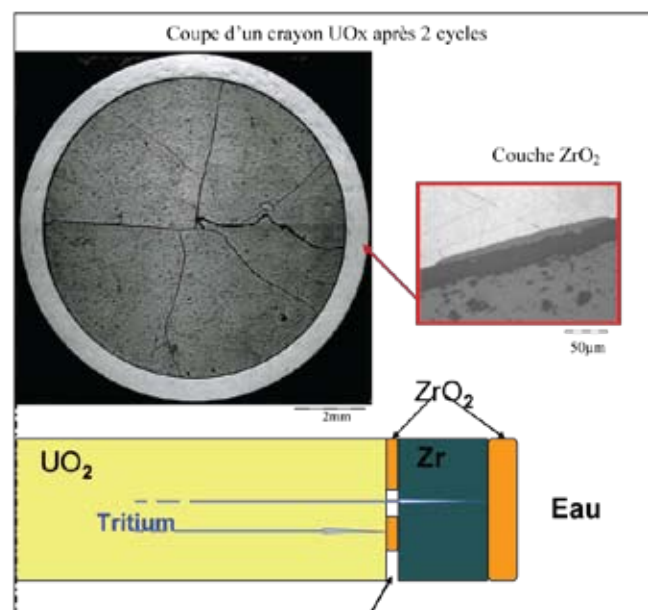
Dans les conditions de température et de pression de fonctionnement des réacteurs nucléaires, le tritium produit dans les éléments de combustible est essentiellement sous forme de gaz dissous (dihydrogène tritié HT ou T₂) mais également sous forme soluble (groupement hydroxyle OT). Le dihydrogène tritié a tendance à diffuser vers la périphérie de

l'oxyde du combustible et à s'accumuler dans le jeu entre l'oxyde et la gaine. Il diffuse alors vers la gaine où il se retrouve piégé sous forme de gaz dissous jusqu'à saturation du zirconium et formation d'hydrides métalliques. Le transfert du tritium depuis l'oxyde vers les gaines de zircaloy est limité par la faible diffusivité du tritium dans la gaine et la formation de couches d'oxyde de zirconium (zircone) sur les parois interne et externe de la gaine :

- l'oxydation complète de la paroi externe de la gaine est quasi-immédiate. Ce phénomène prévient la migration du tritium vers le circuit primaire (hors phénomène de rupture),
- l'oxydation de la paroi interne est progressive et plus lente. La couche de zircone se forme d'abord par îlots. L'oxydation complète de la paroi interne de la gaine intervient lors de la fermeture du jeu oxyde-gaine. La diffusivité du tritium dans cette couche d'oxydation est très faible.

L'analyse de la coupe d'un crayon de combustible UOx après 2 cycles d'irradiation est illustrée sur la figure 1.

Figure 1. Analyse de la coupe d'un crayon de combustible UOx après 2 cycles d'irradiation



Nota :

- Le jeu entre la gaine et l'oxyde diminue sous l'effet du fluage de la gaine (résultant des contraintes de pression exercées sur la gaine) et de la dilatation des pastilles (induite par l'irradiation du combustible et la formation des produits de fission).

L'évolution de la fraction du tritium dans l'oxyde a été évaluée par différentes méthodes. Initialement, l'analyse de coques (tranches de gaines découpées lors du traitement du combustible usé) issues d'éléments combustibles irradiés à moins de 33 000 MWj/t avait conduit à une valeur comprise entre 60 et 70% du tritium produit. Cette valeur a été prise en compte lors du design de l'unité de production UP3 de l'usine AREVA NC de La Hague.

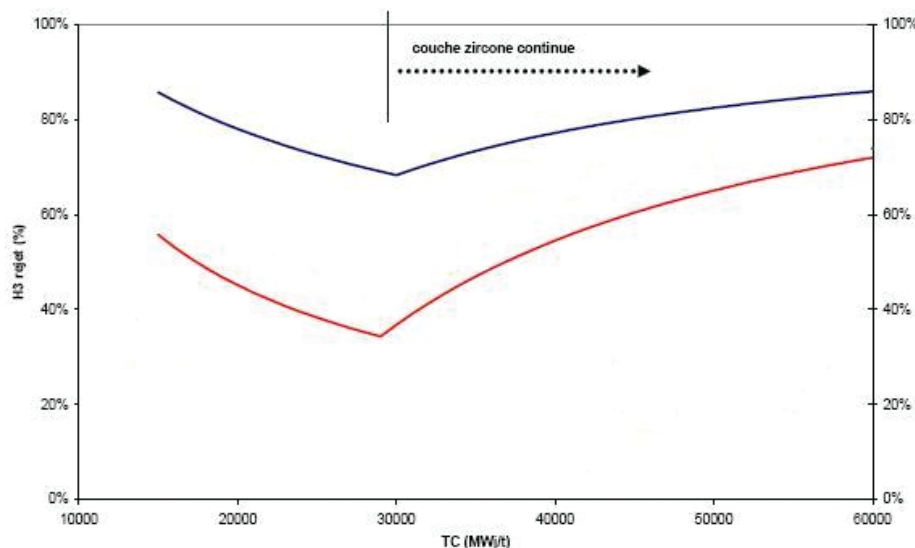
L'évolution des rejets annuels de tritium dans les effluents liquides de l'usine AREVA NC de La Hague entre 1995 et 2007 a montré une tendance inverse : la comparaison des rejets aux valeurs calculées à l'aide de CESAR 4 fait état d'une fraction dans l'oxyde supérieure à 60% et pouvant atteindre plus de 80%. Ceci a permis de mettre en évidence l'évolution de la fraction de tritium dans l'oxyde en fonction du taux de combustion.

¹ Code d'Evolution Simplifiée Appliqué au Retraitement : code d'évaluation des quantités de radionucléides dans les combustibles irradiés.

Dans la première partie de séjour en réacteur, le phénomène de diffusion du tritium de l'oxyde vers la gaine est prépondérant par rapport au flux de production dans l'oxyde. Ce phénomène s'inverse aux alentours de 30 GWj/t du fait des mécanismes exposés précédemment.

Ces résultats sont illustrés dans la figure 2 dans laquelle sont représentés deux comportements limites correspondant aux tendances minimales et maximales considérées par hypothèse pour la répartition du tritium entre l'oxyde et la gaine du combustible.

Figure 2. Illustration de l'évolution théorique de la fraction de tritium dans l'oxyde en fonction du taux de combustion



Une simulation du rejet en tritium liquide basée sur la capacité maximale de l'usine AREVA NC de La Hague (1700 t), le temps de refroidissement minimum requis (5 ans) et le taux de combustion moyen des combustibles EDF sur les années à venir (45 GWj/t) montre une incompatibilité avec la limite de rejet tritium liquide définie dans l'arrêté de rejet et de prélèvement d'eau du site du 10 janvier 2003 modifié.

1|4| Comportement du tritium lors du traitement du combustible utilisé dans l'usine AREVA NC de La Hague

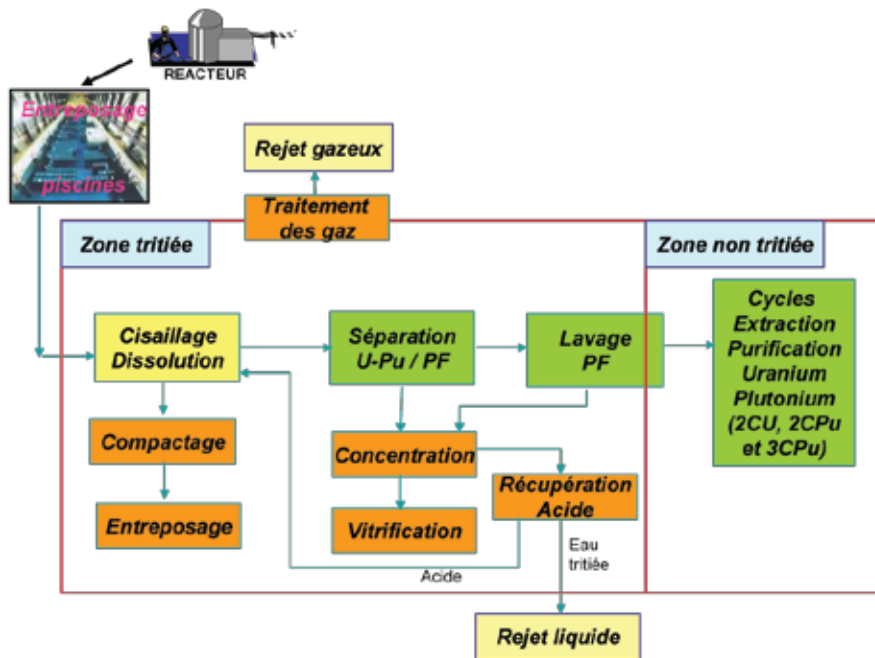
Le cheminement du tritium dans le procédé de traitement du combustible utilisé mis en œuvre dans l'usine AREVA NC de La Hague est lié à l'étape de cisailage et de dissolution :

- l'oxyde d'uranium est dissout dans un bain d'acide nitrique. La fraction de tritium présent dans l'oxyde est oxydée et se retrouve dans la solution de dissolution sous forme d'eau et d'acide nitrique tritiés. Le tritium présent sous cette forme suit les flux liquides et est donc rejeté en mer avec les effluents liquides dits « tritiés » (soit environ 99,5% du tritium présent dans l'oxyde),
- une faible partie du tritium présent dans l'oxyde est rejetée sous forme gazeuse (environ 0,5%). Cette fraction correspond essentiellement à l'humidité présente dans les rejets gazeux mais également au dihydrogène accumulé dans les vases d'expansion des crayons de combustible,
- le tritium présent sous forme d'hydrures dans la gaine reste piégé dans les coques qui sont séparées de la solution de dissolution puis compactées et entreposées.

L'usine AREVA NC de La Hague a été conçue de façon à confiner le tritium dans une zone restreinte de l'usine appelée zone tritiée et de le canaliser vers un flux liquide dilué avant rejet en mer. Les objectifs suivis sont alors :

- d'une part, de simplifier la manipulation d'acide nitrique recyclé dans la zone non tritiée et de limiter le risque de contamination des travailleurs à la zone tritiée,
- d'autre part, de minimiser les rejets de tritium dans les effluents gazeux et de favoriser les rejets de tritium dans les effluents liquides afin de bénéficier de l'importante réduction de l'impact permise par la dilution dans le milieu marin.

Figure 3. Illustration du comportement du tritium lors du traitement du combustible usé



1|5| Rejets de tritium de l'usine AREVA NC de La Hague

Les limites réglementaires fixées par l'arrêté d'autorisation de prélèvements d'eau et de rejets pour l'usine AREVA NC de La Hague sont rappelées dans le tableau ci-dessous.

Tableau 1. Limites réglementaires l'arrêté d'autorisation de prélèvements d'eau et de rejets pour l'usine AREVA NC de La Hague

Evolution des autorisations de rejets de tritium	Limites fixées par les arrêtés de 1984	Limites fixées par l'arrêté du 10 janvier 2003 puis du 8 janvier 2007 modifiant l'arrêté de 1984
Rejets gazeux Impact dosimétrique Digulleville	2 200 TBq (6g) 2,4 µSv	150 TBq (0,4g) 0,165 µSv
Rejets liquides Impact dosimétrique Digulleville	37 000 TBq (104 g) 0,008 µSv	18 500 TBq (52 g) 0,004 µSv

99,5% du tritium rejeté par l'établissement AREVA NC de La Hague est rejeté sous forme liquide ($8,19.10^3$ TBq en 2008) et 0,5% sous forme gazeuse (46,4 TBq en 2008).

L'évolution des rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux est présentée dans les figures 4 et 5. Les valeurs maximales ont été enregistrées en 2004 pour les rejets liquides ($13,9.10^3$ TBq soit environ 39 grammes) et en 1995 pour les rejets gazeux (80 TBq soit environ 0,2 grammes).

Figure 4. Evolution des rejets de tritium dans les effluents gazeux de l'usine AREVA NC de La Hague

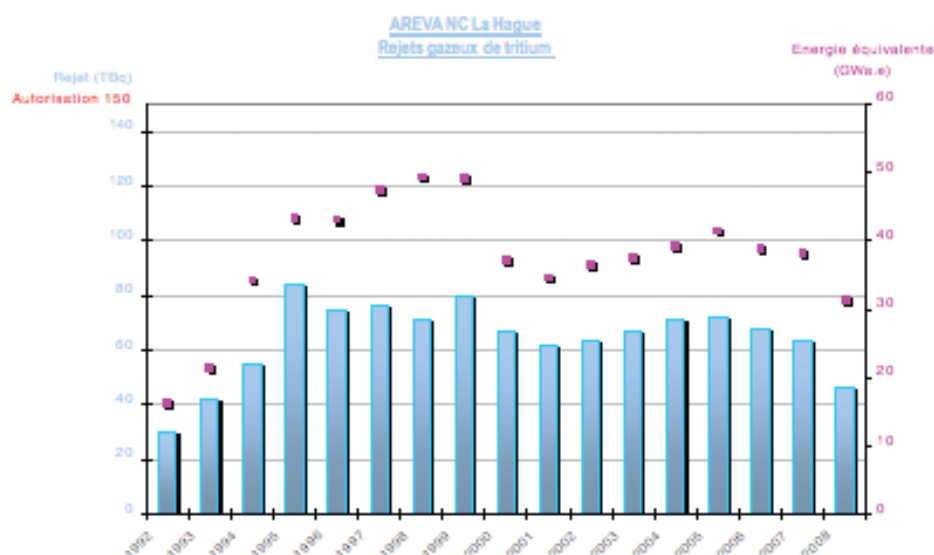
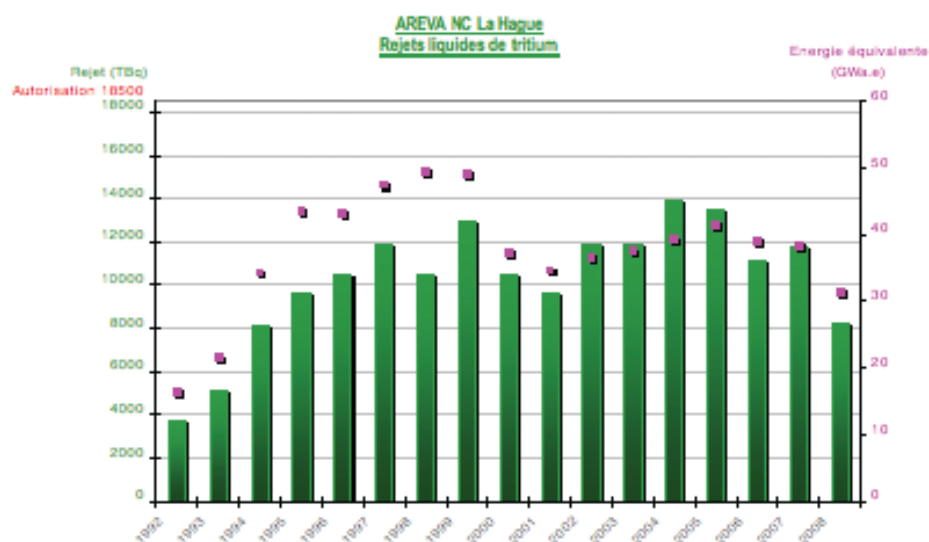


Figure 5. Evolution des rejets de tritium dans les effluents liquides de l'usine AREVA NC de La Hague



L'évolution des rejets de tritium est en première approximation comparable à celle de l'énergie équivalente correspondant aux combustibles traités. On constate néanmoins que les rejets de tritium dans la période 2000-2008 sont comparables à ceux de la période 1992-1999 alors que le tonnage traité a significativement diminué. Cette évolution s'explique par les phénomènes présentés aux chapitres 1.2 et 1.3.

Exprimé en masse, le rejet moyen annuel de tritium en mer est de 38 grammes dilués dans 40 000 m³ d'eau ce qui représente 250 grammes d'eau tritiée HTO dilués dans environ 40 000 tonnes d'H₂O. Après dilution, l'activité moyenne annuelle en tritium dans l'eau de mer à proximité de l'usine AREVA NC de La Hague (port de Goury) est de l'ordre de 10 à 20 Bq/L.

A titre de comparaison, la concentration maximale en tritium dans l'eau potable recommandée par l'Organisation Mondiale de la Santé est de 10 000 Bq/L.

La communauté européenne ne définit pas de limite pour l'eau potable mais retient la valeur indicative de 100 Bq/L, au-delà de laquelle des analyses doivent être menées pour rechercher d'autres radionucléides (directive 98/83/CE).

1|6| Impact des rejets de tritium de l'usine AREVA NC de La Hague

L'impact dosimétrique sur les populations riveraines autour de La Hague est estimé à partir du logiciel ACADIE issu des travaux du GRNC (Groupe Radioécologie Nord-Cotentin) et développé conjointement par l'IRSN et AREVA NC.

L'impact dosimétrique annuel du tritium sur les groupes de référence de Goury (groupe de référence marin) et Digulleville (groupe de référence terrestre) **est inférieur à 0,1 µSv/an, soit moins de 1 % de l'impact total** lui-même de l'ordre de 10 à 20 µSv comparable à moins de deux journées d'exposition à la radioactivité naturelle. Cette estimation est soumise à l'appréciation du groupe radioécologie Nord-Cotentin (GRNC) dont l'avis est rendu public et est présenté à la CLI de La Hague. Le GRNC est un groupe d'expertise pluraliste constitué d'experts d'origines et de domaines de compétences divers (Instituts, ONG, experts étrangers, industriels). Ce travail a été réalisé sur les activités de 2003 à 2006. Cette appréciation a toujours confirmé l'ordre de grandeur des résultats présentés par AREVA NC La Hague.

Compte tenu des conditions de dispersion, des modes de vie et des habitudes alimentaires autour de La Hague, la radiotoxicité du tritium rejeté sous forme gazeuse est 1000 fois supérieure à celle du tritium rejeté sous forme liquide ; la voie de transfert prépondérante étant celle de l'ingestion d'eau tritiée par l'eau de boisson, l'eau des aliments et de tritium organique contenu dans les aliments d'origine terrestre. Le tritium est un radionucléide, qui sous forme d'eau tritiée est très mobile et rapidement intégré dans les cycles de la géosphère et de la biosphère, mais ne présente pas de tendance à l'accumulation dans les composants environnementaux et biologiques.

Les données obtenues en 2004, année pour laquelle l'impact a été maximal sont présentées dans le tableau 2. Celles obtenues en 2008 sont présentées dans le tableau 3.

Tableau 2. Impact des rejets de tritium en 2004 sur les groupes de référence

	Digulleville	Goury
impact rejets tritium liquide (µSv/an)	2,9.10 ⁻³	13,4.10 ⁻³
impact rejets tritium gazeux (µSv/an)	78,4.10 ⁻³	30,2.10 ⁻³
impact rejets tritium liquide + gazeux (µSv/an)	81,3.10 ⁻³	43,6.10 ⁻³

Tableau 3. Impact des rejets de tritium en 2008 sur les groupes de référence

	Digulleville	Goury
impact rejets tritium liquide (µSv/an)	1,7.10 ⁻³	7,9.10 ⁻³
impact rejets tritium gazeux (µSv/an)	51,0.10 ⁻³	19,6.10 ⁻³
impact rejets tritium liquide + gazeux (µSv/an)	52,7.10 ⁻³	27,5.10 ⁻³

Ces considérations amènent aux conclusions suivantes :

- l'impact des rejets de tritium est très faible (inférieur à 0,1 µSv/an) et contribue à hauteur de 1 % de l'impact total autour de La Hague,
- le rejet du tritium dans les effluents liquides doit être privilégié afin de bénéficier de la réduction d'impact obtenue par la dilution du rejet en mer.

2| Expertise des possibilités de réduction des rejets tritium des usines AREVA NC de La Hague

2|1| Définition de la stratégie

L'évaluation des rejets de tritium dans les effluents liquides prévoit un dépassement de l'autorisation de rejet correspondante pour un scénario à moyen terme correspondant au traitement annuel de 1700 tonnes de combustibles usés aux caractéristiques moyennes suivantes :

- un temps de refroidissement de 5 ans,
- un taux de combustion supérieur ou égal à 45 000 MWj/t.

La stratégie globale prise en compte pour l'évaluation de la réduction de l'impact des rejets de tritium dans l'environnement consiste à piéger, immobiliser et conditionner sous une forme appropriée le tritium présent dans les effluents liquides en vue d'un entreposage (immobilisation temporaire permettant la décroissance du tritium) ou stockage (immobilisation sous forme de déchet ultime).

Le volume annuel d'effluents liquides tritiés rejetés en mer est de l'ordre de 40 000 m³. L'immobilisation par un procédé de solidification (cimentation et/ou adsorption) est un procédé simple, disponible immédiatement et maîtrisé par AREVA NC. Cependant, l'étude des points suivants doit être approfondie :

- le confinement du tritium pendant la coulée et la prise du ciment. Les gaz de ventilation du procédé doivent être traités dans une unité spécifique. Certaines études indiquent en effet que la perte initiale représente 25% de la quantité traitée.
- les risques de surpression et d'explosion liés au dégagement d'hélium⁻³ et de dihydrogène produit par l'autoradiolyse de l'eau tritiée.

Ces études permettront de préciser la nature de l'enveloppe du colis cimenté final et d'évaluer les coûts liés à la cimentation des effluents liquides tritiés.

Par ailleurs, l'estimation réalisée en considérant une formulation classique pour le ciment montre que le volume annuel de déchet cimenté serait de l'ordre de 80 000 m³. De même, le volume à entreposer en cuve sous forme liquide peut être évalué en considérant une période d'entreposage égale à une période de décroissance, ce qui permet de réduire le rejet de tritium d'un facteur 2. Le volume maximal à entreposer est alors de 500 000 m³. En conséquence, la mise en œuvre de procédés de concentration des effluents tritiés afin de rendre le volume à entreposer ou conditionner compatible avec les voies identifiées est également étudiée. Cependant, cette étape engendre des risques supplémentaires de rejet incidentel de matière dans l'environnement. L'impact de ces rejets est accru en raison de l'augmentation de l'activité et des quantités de tritium accumulées lors de cette étape.

Nota :

- Cette solution nécessite également :
- une gestion adaptée du risque d'explosion et de fuite de tritium liées à la production de dihydrogène tritié et d'hélium par l'autoradiolyse de l'eau tritiée,
- une maîtrise des risques de corrosion des matériaux induite par les radiations β et l'eau oxygénée produits par l'autoradiolyse de l'eau tritiée,
- un traitement des gaz de ventilation des cuves permettant de prévenir les rejets de tritium dans les effluents gazeux.

Ce paragraphe présente les principaux procédés permettant de diminuer le volume d'effluents liquides tritiés à traiter en vue de réduire les rejets de tritium dans l'environnement et évalue la faisabilité de leur mise en œuvre dans une usine de traitement du combustible usé et plus particulièrement dans l'usine AREVA NC de La Hague :

- voloxydation,
- procédés pyrométallurgiques,
- procédés de séparation isotopique de l'hydrogène,
- procédé TRILEX.

2|2| Procédés de séparation du tritium du combustible

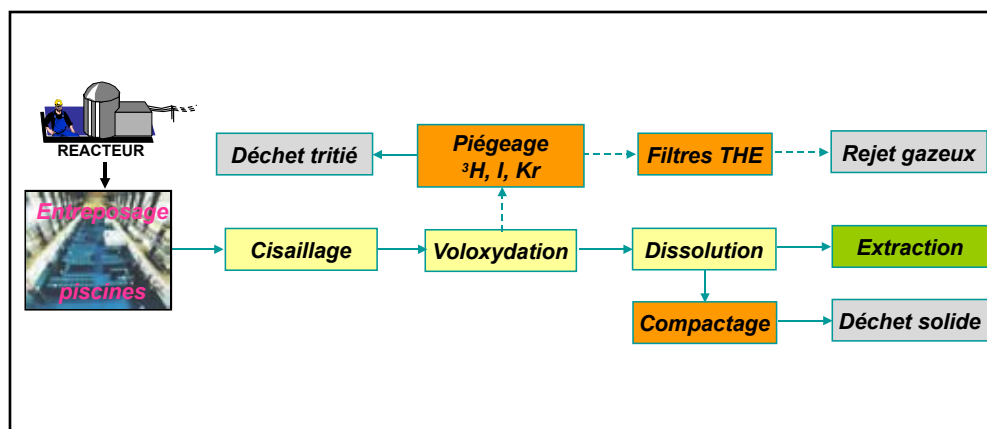
Le procédé de traitement des combustibles usés mis en œuvre dans l'usine AREVA NC de La Hague conduit à diluer le tritium sous forme d'eau tritiée dans un grand volume de liquide. Une alternative possible au traitement de cette grande quantité d'effluents serait de séparer précocement le tritium du combustible. Les procédés identifiés sont la voloxydation et les procédés pyrométallurgiques.

2|2|1| Procédé de voloxydation

La voloxydation est un procédé pouvant être intercalé entre les étapes de cisailage et de dissolution afin de séparer du combustible usé, le tritium et les autres composés volatils.

Ce procédé consiste à chauffer, généralement entre 400 et 600°C, le combustible cisailé dans un four balayé par un flux gazeux oxydant afin de convertir l' UO_2 en U_3O_8 . Le schéma de principe du procédé de voloxydation est présenté dans la figure 6. Ce changement de valence s'accompagne d'un changement de structure cristallographique qui provoque l'éclatement des coques et la pulvérisation de l'oxyde du combustible. Les produits de fission volatils sont alors relâchés dans les gaz de ventilation du procédé. La voloxydation permet une récupération quasi-quantitative de la quantité de tritium présente dans le combustible. Le volume d'effluents liquides généré dépend de la teneur en eau ajoutée dans le flux gazeux oxydant pour prévenir le dépôt de poussières sur les parois du four. Les essais réalisés montrent que la voloxydation permet de réduire considérablement le volume d'effluents liquides tritiés à traiter.

Figure 6. Schéma simplifié de procédé de traitement des combustibles basé sur la voloxydation



Toutefois :

D'autres produits de fission (notamment le krypton, l'iode, le carbone-14 et le ruthénium) sont relâchés avec un taux de récupération variable selon les essais. Une unité complexe de traitement des gaz doit donc être implantée en aval du procédé de voloxydation.

La voloxydation engendre un **risque d'inflammation** des débris des gaines des éléments combustibles notamment dans le cas des gaines en Zircaloy en raison des conditions de température, de l'atmosphère oxydante et de la l'éclatement des gaines.

La voloxydation rend la **dissolution du combustible plus délicate**, ce qui engendre un risque de sûreté-criticité lié à l'augmentation de la quantité de résidus insolubles

Ce procédé est développé par ORNL (Oak Ridge National Laboratory) du DoE (Department of Energy), RIAR (Russian Institute of Atomic

Reactors) et JAEA (Japan Atomic Energy Agency). Cependant, il reste aujourd'hui au stade du développement en laboratoire et de nombreux développements, essais et études de sûreté sont nécessaires avant sa mise en œuvre industrielle.

2|2|2| Procédés pyrométallurgiques

Les procédés pyrométallurgiques sont incompatibles avec le procédé de traitement des combustibles usés mis en œuvre dans l'usine AREVA NC de La Hague (procédé hydrométallurgique PUREX). En conséquence, ces procédés ne peuvent être envisageables que dans le cadre d'une nouvelle usine.

Les procédés pyrométallurgiques consistent en une dissolution et une séparation des espèces chimiques en milieu salin fondu à une température de l'ordre de 500 à 800°C. La destruction complète du réseau cristallin d' UO_2 permet de relâcher le tritium et les autres composés volatils dans les gaz de ventilation procédé.

Plusieurs milieux (chlorures, fluorures) et diverses techniques de séparation (extraction, électrodéposition, précipitation sélective) ont été étudiés. Les procédés pyrométallurgiques présentent les avantages suivants :

- possibilité de traiter des matériaux réfractaires,
- amélioration de la solubilité des combustibles dans les sels fondus,
- possibilité de traiter des combustibles à faible temps de refroidissement (très bonne résistance aux radiations des sels fondus),
- compacité des équipements de procédé.

Toutefois, ces procédés sont beaucoup moins avancés que les procédés hydrométallurgiques et de nombreux développements sont nécessaires avant leur éventuelle mise en œuvre industrielle. Les études sur la maîtrise du pilotage du procédé doivent notamment être approfondies. Une évaluation menée conjointement par AREVA NC et RIAR conclue à une infaisabilité technique à moyen terme [6]. Par ailleurs, cette étude présente les deux procédés pyrométallurgiques et hydrométallurgiques comme des procédés complémentaires.

2|3| Procédés de séparation isotopique de l'hydrogène

Le procédé à mettre en œuvre doit à la fois :

- décontaminer en tritium les effluents liquides tritiés afin de réduire suffisamment les rejets de tritium dans le milieu marin,
- concentrer le tritium récupéré dans un flux de volume réduit,

Ce procédé doit donc être un procédé de séparation isotopique de l'hydrogène permettant à la fois des facteurs de concentration et de décontamination significatifs et ce, pour un volume annuel d'effluents élevé et une quantité de tritium trop faible pour être valorisable.

Nota :

- La quantité annuelle produite par une usine de traitement du combustible est inférieure à 50 grammes alors que :
- les quantités gérées dans le domaine de la fusion thermonucléaire (civile ou militaire) s'expriment en dizaines de kilogrammes,
- la quantité annuelle extraite d'un réacteur CANDU est de l'ordre de 500 grammes.

Les procédés de séparation isotopique de l'hydrogène ont été développés pour :

- séparer le deutérium de l'hydrogène léger (production et retraitage d'eau lourde). Les procédés utilisés sont l'électrolyse, la distillation de l'eau sous vide et les procédés d'échange chimique combinés à la distillation cryogénique.
- séparer le tritium du deutérium dans un flux d'eau lourde (décontamination du modérateur d'un réacteur à eau lourde),
- séparer l'ensemble des isotopes de l'hydrogène dans un flux de dihydrogène (effluents gazeux d'un réacteur de fusion thermonucléaire).

Bien que différents domaines d'application soient confrontés au problème de la détritiation d'un flux d'eau légère (réacteurs à eau légère, horlogerie, usines de traitement du combustible usé, gestion des effluents liquides tritiés d'installations nucléaires), la séparation du tritium de l'eau légère n'a fait l'objet d'aucune application.

Les solutions disponibles résident donc dans :

- les procédés développés pour la production et la purification d'eau lourde. Le rapport de masse atomique T/H, étant supérieur aux rapports D/H et T/D, les performances obtenues en appliquant ces procédés à la séparation du tritium de l'eau légère seront accrues,
- les études de faisabilité réalisées sur la séparation du tritium des effluents liquides des installations nucléaires. Cette étude s'appuie notamment sur une série de rapports commandés par le Département américain à l'énergie (DoE) pour évaluer les possibilités de décontamination des effluents liquides des sites de Savannah River et Hanford [7].

Au vu de la référence [7], les procédés applicables se limitent à l'électrolyse, la distillation de l'eau sous vide, aux procédés de séparation sur résines et aux procédés d'échange chimique. Les procédés où le tritium se trouve exclusivement sous forme de dihydrogène sont exclus car ceux-ci ne deviennent économiquement viables que lorsque le tritium récupéré est valorisé.

Nota :

- Dans le domaine de la fusion thermonucléaire (civile ou militaire), les unités de traitement des gaz, qui sont basées sur l'oxydation du dihydrogène suivie de la déshydratation des effluents gazeux, génèrent également un effluent liquide tritié. Ces effluents sont actuellement entreposés en enceinte confinée. Divers procédés ont été étudiés en vue de leur traitement. Le procédé CECE (Combined Electrolysis and Catalytic Exchange) est actuellement considéré comme le procédé de référence.
- Dans tous ces domaines, les volumes à traiter sont très faibles et les procédés développés sont difficilement adaptables aux capacités requises pour une usine de traitement du combustible usé. C'est notamment le cas de la diffusion thermique du dihydrogène et des procédés de séparation par extraction liquide-liquide ou par laser. Ces procédés permettent des facteurs de séparation très élevés [10] mais ne peuvent être mis en œuvre que pour le traitement de très faibles quantités.
- Un procédé a été développé et mis en œuvre par GE en Grande-Bretagne pour réduire les rejets de tritium sous forme d'OBT dans les effluents organiques d'une unité de production de traceur biologiques. Cette unité est basée sur la combustion des effluents organiques suivie de la distillation de l'eau sous vide. L'eau tritiée enrichie est convertie en dihydrogène et purifiée dans une unité de distillation cryogénique. La capacité de l'unité et les performances de la colonne à distiller sont faibles au regard des performances requises pour le traitement des effluents de l'établissement AREVA NC de La Hague.

2|3|1| Séparation sur résines

Un procédé de séparation du tritium basé sur des résines est développé par la société MSI (Molecular Separation Inc.) [3, 7] pour la récupération du tritium dans les effluents liquides d'installations nucléaires. Ce procédé repose sur la différence d'affinité entre les isotopes de l'eau pour les sites d'hydratation de la résine, qui permet d'adsorber préférentiellement l'eau tritiée.

Les effluents liquides tritiés sont traités dans des colonnes mises en série dont le nombre et la taille dépendent des performances visées et du débit à traiter. Le procédé est conduit à une température de l'ordre de 50°C.

Deux modes de mise en œuvre sont proposés :

- un mode statique en lit fixe. Dans ce mode discontinu, lorsque les résines sont saturées, celles-ci sont régénérées en deux temps par chauffage à une température de 80-120°C, puis à une température de 160°C,
- un mode dynamique où la résine mise en œuvre en lit mobile circule de manière continue entre les colonnes d'adsorption et les colonnes de régénération.

Les gaz produits lors de la régénération sont traités dans un module de récupération de l'eau tritiée basé sur l'absorption sur support solide ou la condensation.

Ce procédé est adapté au traitement de l'eau tritiée et peu énergivore par rapport à la distillation ou à l'électrolyse.

Cependant, les essais menés par MSI, l'université de Washington, « Clemson Environmental Technology Laboratory », et Duratek en 2002 (supportés par l'EPRI) ont montré des performances insuffisantes. De plus, les résultats présentés dans le document [7] laissent penser que les performances sont diminuées lorsque la concentration en tritium est réduite. Ce procédé ne semble pas prêt pour une mise en œuvre industrielle ; une démonstration de son **efficacité globale reste nécessaire**.

Nota :

- Les essais ont confirmé une adsorption sélective du tritium. Cette adsorption est toutefois restée limitée à 39% dans les cas les plus favorables lors des essais menés par Duratek en 2002 [7].

Par ailleurs, pour assurer une bonne adsorption, la solution à traiter doit être **exempte d'impuretés ioniques et organiques**. L'impact des impuretés présentes dans les effluents tritiés d'une usine de traitement et leur séparation éventuelle doit donc être étudié.

Enfin, l'étape de régénération des résines engendre un risque de rejet d'eau tritiée dans l'environnement.

Des procédés de séparation sur membrane sont également en développement. Leurs avantages sont comparables aux procédés de séparation sur résines. Les essais réalisés ont également montré des performances insuffisantes.

2|3|2| Electrolyse

L'électrolyse de l'eau est basée sur la différence de tension d'électrolyse et de diffusion des ions dans l'électrolyte. Les cascades d'électrolyseurs ont été utilisées dès les années 1940 pour la production d'eau lourde concentrée à partir d'eau naturelle. Pour le traitement des effluents tritiés, le fonctionnement de l'électrolyse est discontinu. Les formes légères migrant plus rapidement et étant préférentiellement réduites à la cathode :

- le flux de dihydrogène produit est appauvri en tritium,
- l'électrolyte s'enrichit en tritium.

La teneur en tritium dans le flux de dihydrogène augmente progressivement.

Lorsque la teneur en tritium devient trop élevée, le procédé est arrêté et l'électrolyte est régénéré. Les facteurs de séparation obtenus dépendent de la technologie utilisée. Les technologies les plus matures sont :

- les électrolyseurs alcalins. Cette technologie est mature et présente une capacité faible (de l'ordre de 500 L/h). Les facteurs de séparation obtenus sont modérés car l'écart entre les masses atomiques des espèces réduites à la cathode (H_2O et HTO) des espèces migrantes dans l'électrolyte (OH^- et OT^-) est faible. Cette technologie engendre des risques de fort rejet de matière en cas d'accident en raison du fort inventaire accumulé,
- ces risques sont réduits dans le cas de la technologie à membrane. Cette technologie permet des facteurs de séparations plus élevés car l'écart entre les masses atomiques des espèces réduites à la cathode et migrantes dans l'électrolyte (H^+ et T^+) est significatif. Cependant, cette technologie est moins mature que la technologie alcaline, de capacité actuelle très faible (50 à 100 fois plus faible) et engendre des risques supplémentaires d'incendie et d'explosion de la membrane.

Dans tous les cas, l'électrolyse engendre des coûts d'investissement et d'exploitation élevés ainsi que des risques supplémentaires qui doivent être étudiés. Par ailleurs, les capacités disponibles sont faibles au regard du volume à traiter. Cette technologie a été envisagée dans le domaine militaire (électrolyse bipolaire) puis abandonnée en raison des faibles capacités et performances obtenues. Les électrolyseurs sous pression présentent une capacité accrue mais amplifient les risques d'explosion du dihydrogène et de fuite de matière.

L'électrolyse en tant que procédé intégré de traitement des effluents liquides n'est donc pas applicable au traitement d'un flux de plusieurs dizaines de milliers de m^3 /an au regard de la taille de l'installation et de la consommation énergétique imposées par les performances requises. Par ailleurs, l'innocuité des impuretés **ioniques et organiques** présentes dans les effluents tritiés d'une usine de traitement pour les matériaux de l'électrolyseur doit être vérifiée.

2|3|3| Distillation de l'eau sous vide

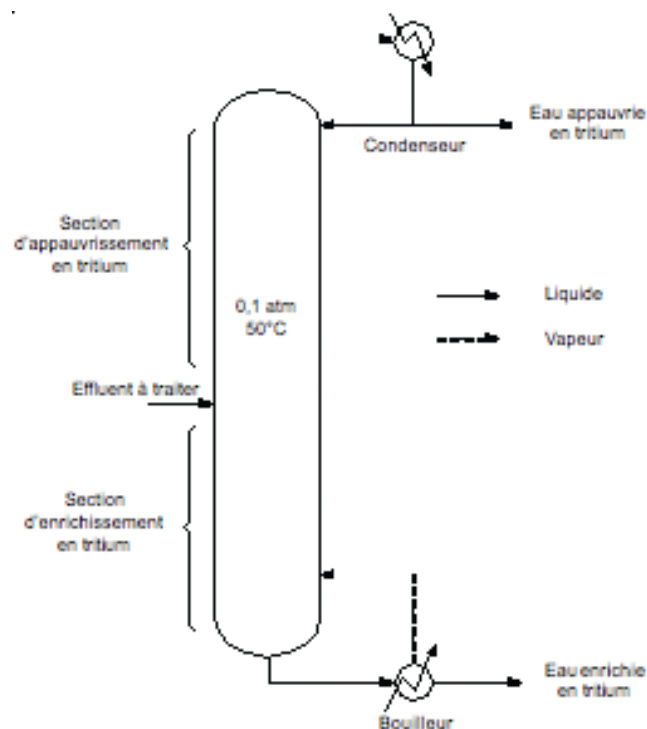
Ce procédé est basé sur la différence de volatilité entre les isotopes de l'eau. Le schéma de principe du procédé de distillation sous vide est présenté dans la figure 7. Les masses atomiques des isotopes de l'eau étant très proches, les facteurs de séparation obtenus sont trop faibles pour permettre la séparation à pression atmosphérique. Le facteur de séparation augmentant lorsque la température diminue, l'opération est réalisée sous vide (entre 100 et 200 mbar). Le facteur de séparation obtenu à $50^\circ C$ est alors de 1,06 ce qui reste très proche de 1. La mise en œuvre de ce procédé nécessite donc un fort reflux et un grand nombre d'étages théoriques d'équilibre ce qui engendre des coûts d'investissement et de fonctionnement très élevés.

Ce procédé a été utilisé combiné à l'électrolyse pour purifier l'eau lourde. Ce procédé est largement utilisé pour le retitrage du modérateur des réacteurs à eau lourde car la distillation de l'eau sous vide reste le procédé le plus simple, le plus souple et le plus mature. De plus, la quantité à traiter périodiquement se limite au stock du réacteur et les facteurs de concentration requis sont très faibles. L'unité du réacteur de recherche Orphée du centre CEA de Saclay permet également de décontaminer le modérateur. Cependant, le stock de modérateur à traiter est beaucoup plus faible que dans le cas d'un réacteur commercial.

Les colonnes à distiller sont équipées d'un garnissage spécifique :

- présentant une capacité élevée et une faible perte de charge en raison du fonctionnement en dépression,
- présentant une faible hauteur d'étage théorique afin de limiter la taille des équipements.

Figure 7. Schéma de principe du procédé de distillation sous vide



Le garnissage le plus répandu est le garnissage Gauze CY développé par Sulzer spécifiquement pour cette application. Le matériau utilisé est le cuivre. Un traitement spécifique du garnissage (oxydation) est nécessaire pour obtenir un mouillage adéquat. Le matériau obtenu est sensible aux impuretés ioniques et organiques. Les impuretés présentes dans les effluents liquides tritiés d'une usine de traitement doivent donc être séparées.

La distillation de l'eau sous vide a été retenue pour sa maturité, sa souplesse et sa simplicité de fonctionnement. D'après le pré-dimensionnement réalisé par AREVA NC, l'unité de distillation nécessaire pour traiter l'eau tritiée dans l'usine AREVA NC de La Hague à capacité nominale, devrait comporter environ 13 colonnes (de diamètre 4 m et de hauteurs 25 m). La masse de garnissage de cuivre nécessaire est de 1190 tonnes. L'exploitation industrielle de cette installation conduirait à une consommation énergétique de 125 MW (soit 2 fois la consommation d'énergie électrique de la totalité de l'établissement AREVA NC de La Hague en 2007).

2|3|4| Procédés d'échange chimique

Les procédés d'échange chimique reposent sur l'échange d'isotopes de l'hydrogène entre deux composés hydrogénés selon une réaction équilibrée du type : $HX + TY \leftrightarrow TX + HY$

Les couples possibles (classés du facteur de séparation le plus faible au plus élevé) sont les couples H_2O/H_2S , H_2/NH_3 , H_2O/H_2 et H_2/CH_3NH_2 . En raison des composés utilisés, ces procédés engendrent des risques élevés d'explosion et de fuite de matière en raison de la présence de fortes quantités de tritium concentré. De plus, à l'exception du couple H_2O/H_2 , le procédé est sous pression (de l'ordre de quelques dizaines de bars). Les couples H_2O/H_2S , H_2/NH_3 et H_2/CH_3NH_2 ont été utilisés pour la production d'eau lourde au Canada, en France et en Inde car ces procédés ne nécessitent pas de catalyseur et permettent de réduire la taille des installations. Le procédé Girdler-Sulphide est le plus utilisé. Il est mis en œuvre sous une pression de l'ordre de 20 bar dans des colonnes de température différente avec recirculation du gaz H_2S .

Cependant, la maîtrise des **risques de sûreté** (risques de fuite de gaz tritiés et de sulfure d'hydrogène toxique et corrosif [7]) liés à ce procédé est particulièrement délicate. De même, le risque d'explosion, de plus sous pression, associé aux couples H_2/NH_3 et H_2/CH_3NH_2 n'est pas acceptable dans le cas d'une usine de traitement du combustible usé. En conséquence, ces procédés sont exclus.

Le couple H_2O/H_2 est mis en œuvre dans les unités de retirage des réacteurs à eau lourde de l'ILL (Institut Lauë-Langevin) à Grenoble (réacteur de recherche) et les réacteurs CANDU commerciaux des centrales de Darlington (Canada) et Wolsong (Corée). Dans ce cas, l'objectif second est de réduire l'activité en tritium du modérateur à quelques centaines de GBq/L (du tritium est produit par les réactions d'absorption neutroniques sur le deutérium et certains éléments légers) afin de limiter les risques d'exposition des travailleurs.

Dans le procédé d'échange chimique, le flux d'eau lourde à purifier est mis en contact avec un flux de dihydrogène lourd purifié. L'hydrogène léger est préférentiellement extrait par le dihydrogène. Alors que le tritium se partage entre les deux flux. Un rapport molaire entre le flux de dihydrogène et le flux d'eau lourde est requis pour réaliser la décontamination en tritium de l'eau lourde. Le flux de dihydrogène est ensuite purifié vis-à-vis de l'hydrogène léger et du tritium dans une unité de distillation cryogénique.

Plusieurs colonnes sont mises en série afin de concentrer le tritium récupéré dans un flux de volume réduit en vue de sa valorisation. Le facteur de concentration en tritium requis est très élevé. En revanche, le facteur de décontamination en tritium requis est modéré car le flux décontaminé est recyclé dans le réacteur.

Les unités de Grenoble et Darlington sont basées sur le procédé VPCE (Vapor Phase Catalytic Exchange). Dans ce procédé, le couple H_2O/H_2 est mis en œuvre en phase gaz homogène à 200°C en présence d'un catalyseur. Le principal inconvénient du procédé VPCE est lié à la mise en œuvre en phase gaz homogène : plusieurs équipements différents doivent être combinés à chaque étage théorique pour constituer un schéma à contre-courant. Par ailleurs, les facteurs de séparations obtenus sont faibles.

Nota :

- Le bailleur de procédé est le CEA. L'unité de Grenoble a été construite par Sulzer.

AECL (Atomic Energy of Canada Ltd), en développant un catalyseur qui conserve son efficacité lorsqu'il est mouillé, a permis de mettre en œuvre le couple H_2O/H_2 en phase hétérogène, dans une colonne garnie de lavage de gaz. De plus, les conditions de fonctionnement sont plus proches de l'ambiant :

- la température de fonctionnement est de l'ordre de 60 à 70°C, ce qui permet d'obtenir des facteurs de séparation plus élevés
- le procédé est sous pression atmosphérique.

Ainsi, le procédé LPCE (Liquid Phase Catalytic Exchange) permet de réduire considérablement la taille des installations de retirage et de détritiation du modérateur des réacteurs à eau lourde.

Les catalyseurs utilisés sont des matériaux à base de platine rendus hydrophobes à l'aide d'un traitement spécifique. Le catalyseur permet l'échange de l'hydrogène entre la vapeur d'eau et le dihydrogène. Un garnissage hydrophile est ajouté pour assurer l'échange de l'hydrogène entre l'eau liquide et la vapeur d'eau. De nombreuses déclinaisons du procédé ont été proposées en fonction de la nature et de l'agencement des matériaux du garnissage de la colonne.

Ce procédé a été mis en œuvre à l'échelle industrielle dans l'unité de purification du circuit de modérateur des réacteurs CANDU de la centrale de Wolsong (Corée) géré par KHNP. Pour cette application, le bailleur de procédé est AECL. Les études d'ingénierie ont été réalisées par la société Kinectrics. Le développement du garnissage de la colonne LPCE a été pris en charge par KAERI et KEPRI. Des études similaires sont en cours pour la centrale de Cernavoda (Roumanie).

Le procédé mis en œuvre dans l'unité de Wolsong ne peut être appliqué à la séparation du tritium des effluents liquides tritiés. En effet :

- d'une part, les isotopes lourds de l'hydrogène ont une plus grande affinité pour l'eau,
- d'autre part, les facteurs de séparation T/H sont plus élevés que les facteurs de séparation T/D.

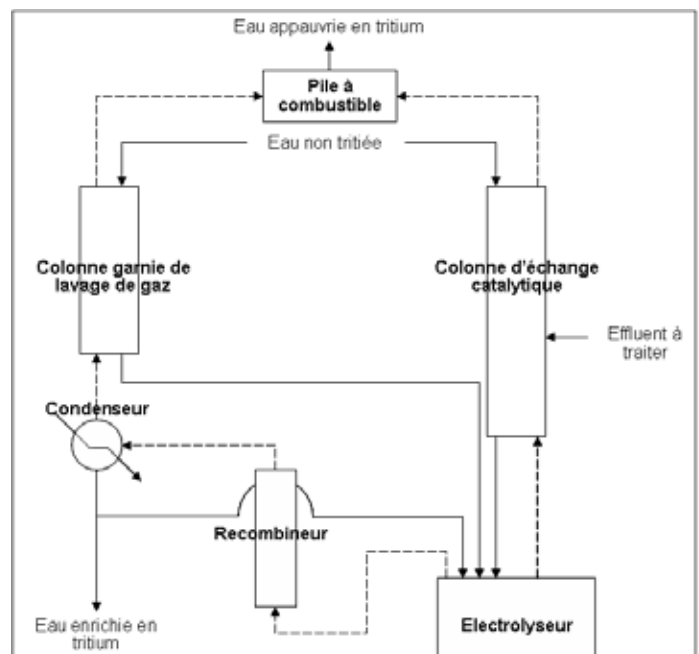
Ainsi, la mise en œuvre de ce procédé nécessiterait un débit molaire de dihydrogène environ 5 fois supérieur au débit d'eau à traiter. En conséquence, dans le cas de la séparation du tritium des effluents liquides tritiés, le procédé LPCE doit être combiné à un procédé de conversion de l'eau en dihydrogène.

Nota :

- La mise en œuvre du couple H_2O/H_2 en configuration bithermique avec recirculation du flux d'hydrogène comparable au procédé Girdler-Sulphide permet de supprimer l'étape de conversion. Cependant, la pression de fonctionnement de ce procédé est de l'ordre de 50 bars ce qui n'est pas acceptable pour une usine de traitement du combustible usé.

Le procédé CECE (Combined Electrolysis Catalytic Exchange) combinant l'électrolyse avec le procédé LPCE est considéré comme la combinaison la plus efficace. Ce procédé est aujourd'hui le procédé de référence pour le traitement des effluents liquides d'une unité de fusion thermonucléaire. Le schéma de principe du procédé CECE est présenté sur la figure 8. De nombreux développements sont réalisés dans le cadre du projet ITER. Dans les applications correspondantes, le procédé CECE est combiné à une unité de distillation cryogénique afin de valoriser le tritium récupéré.

Figure 8. Schéma de principe du procédé CECE



Les inconvénients du procédé CECE résident dans les coûts d'investissement et de développement liés au catalyseur, les coûts de fonctionnement liés à l'électrolyse et les risques d'explosion liés au fonctionnement sous atmosphère de dihydrogène.

Nota :

- Des variantes du procédé CECE basées sur des technologies d'électrolyse à haute température sont en cours de développement. Ces technologies d'électrolyse permettent de réduire considérablement la consommation d'énergie et de rendre le procédé économiquement viable pour d'autres applications. Cependant, de nombreux développements sont nécessaires avant d'appliquer ces procédés dans les installations de fusion thermonucléaire ou pour la décontamination d'effluents liquides tritiés.

Les risques supplémentaires liés à l'électrolyse dépendent de la technologie utilisée. La technologie à membrane solide est développée dans le cadre du projet ITER. Ces études doivent permettre de démontrer le confinement du tritium et la résistance aux radiations du tritium de l'électrolyte SPM (Solid Polymer Membrane). Cependant, les capacités disponibles pour cette technologie sont faibles au regard d'une application à des très grands volumes d'effluents. La technologie alcaline a été initialement exclue en raison des risques engendrés et de la présence d'impuretés dans le dihydrogène produit. Cependant, cette technologie n'est pas définitivement exclue en raison de sa plus grande capacité.

Le procédé CECE a été mis en œuvre uniquement dans des unités pilote. Le pilote industriel CIRCE (Combined Industrial Reforming and Catalytic Exchange), développé par AECL conjointement avec Air Liquide Canada pour la production d'eau lourde à partir d'eau naturelle, constitue la plus grande échelle de mise en œuvre du procédé CECE.

Ces installations ont été réalisées à l'échelle du pilote ou de petites unités au regard du volume d'effluents tritiés d'une usine de traitement. Ces procédés semblent difficilement applicables au traitement d'un flux de plusieurs dizaines de milliers de m³/an du point de vue technique et économique. Cependant, le procédé CECE est actuellement le procédé de référence pour le traitement d'effluents liquides tritiés d'une installation de fusion thermonucléaire. De plus, le document [7] considère ce procédé comme un procédé prometteur pour la récupération du tritium dans les effluents du site de Hanford. En conséquence, l'application du procédé au traitement de l'usine AREVA NC de La Hague a été évaluée.

D'après les prédimensionnements réalisés par AREVA NC, l'unité CECE nécessaire pour traiter l'eau tritiée de l'usine AREVA NC de La Hague à capacité nominale, devrait comporter :

- 3 colonnes LPCE (de diamètre 2 m et de hauteurs 5,5 m),
- une unité d'électrolyse composée de 800 électrolyseurs à membrane (modèle de référence hypothétique considéré dans le projet ITER).

Les performances considérées sont :

- un facteur de décontamination de 114,
- un facteur de concentration de 250.

L'exploitation industrielle de cette installation conduirait à une consommation énergétique de l'ordre de 160 MW (hors récupération d'énergie).

2|4| Procédé TRILEX

Le procédé TRILEX [11] vise à réduire les entrées d'eau non tritiée dans la zone tritiée d'une usine de traitement afin de rendre le volume d'effluents liquides tritiés à traiter compatible avec un procédé de séparation isotopique. Ceci s'obtient notamment via :

- l'utilisation de réactifs anhydres ou en solution aqueuse concentrée,
- le recyclage intensif d'eau tritiée pour la préparation des réactifs aqueux,
- la suppression d'entrées d'eau non tritiée dans la zone tritiée.

Les inconvénients et incertitudes liés à l'application des recommandations du brevet TRILEX dans l'usine AREVA NC La Hague résident essentiellement dans le recyclage intensif d'eau et d'acide récupérés qui entraîne une augmentation de la concentration et de l'inventaire de tritium dans la zone tritiée, ce qui :

- complexifie la préparation des réactifs en exploitation,
- accroît les teneurs en eau tritiée dans les rejets gazeux.

En conséquence, une unité supplémentaire de traitement des gaz doit être implantée afin de prévenir une augmentation des rejets de tritium dans les effluents gazeux et de l'impact de ces rejets. Les technologies existantes sont les procédés de déshydratation et de condensation. Le volume d'effluents générés par ces procédés est faible. Cependant, les procédés de déshydratation sont des procédés discontinus et peuvent nécessiter par exemple un secours par des colonnes de lavage de gaz à l'eau non tritiée pour parer à tout risque d'indisponibilité. Ce procédé plus robuste génère cependant un volume d'effluents liquides supplémentaire significatif.

2|5| Application à l'usine AREVA NC de La Hague

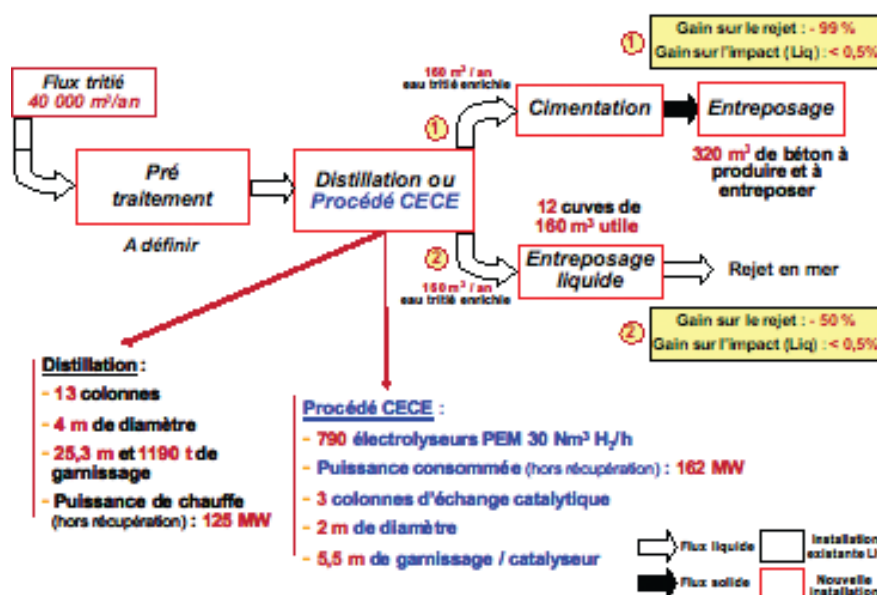
Les scénarios retenus pour la réduction des rejets de tritium dans les effluents liquides de l'usine AREVA NC de La Hague sont basés sur :

- la réduction du volume d'effluents liquides tritiés à traiter,
- l'entreposage ou le stockage du tritium sous forme de déchet ultime.

Les procédés analysés sont la distillation de l'eau sous vide et le procédé CECE. Une unité de prétraitement peut être nécessaire pour rendre les effluents liquides à traiter compatibles avec ces procédés.

Le taux d'incorporation retenu pour la cimentation correspond à un rapport massique effluent liquide/déchet cimenté de 25% (soit un rapport volumique effluent liquide/déchet cimenté de 50%). La durée d'entreposage en cuve considérée pour les effluents liquides tritiés est égale à une période de décroissance (~12,3 ans).

Figure 9. Scénarios de réduction des rejets de tritium dans les effluents liquides de l'usine AREVA NC de La Hague



Les caractéristiques des installations correspondant à ces scénarios sont présentées dans la figure 9.

La réduction des rejets de tritium dans les effluents liquides permise par les scénarios présentés reste faible au regard des coûts d'investissement et d'exploitation, des risques de sûreté engendrés et de la réduction d'impact obtenue. Celle-ci est inférieure à 0,5% de l'impact total des rejets liquides du site. De plus, la mise en œuvre de ces scénarios s'accompagne d'un risque d'augmentation des rejets gazeux et donc de l'impact dosimétrique global.

3 | Conclusion

En préambule, il est rappelé que, compte tenu des conditions locales de dispersion et des modes de vie, le rejet d'un TBq de tritium sous forme gazeuse conduit à un impact dosimétrique sur les groupes de référence 1000 fois plus élevé que le rejet d'un TBq de tritium sous forme liquide. C'est pourquoi, l'usine AREVA NC de La Hague est conçue de façon à privilégier le rejet et la dilution du tritium dans le milieu marin. Ce mode de gestion conduit à un impact global du rejet de tritium très inférieur à 0,1 μSv (ce qui est très faible en comparaison à l'exposition naturelle moyenne de 2 400 $\mu\text{Sv/an}$ en France).

Dans le procédé de traitement, le tritium provenant des combustibles usés se trouve sous forme d'eau tritiée et suit le flux des produits de fission. Il subit alors un certain nombre de cycles évaporatoires et se retrouve in fine dilué dans un grand volume de distillats (40 000 m^3 pour 1100 tonnes traitées) appelés communément « eaux tritiées ». De telles quantités sont incompatibles avec un entreposage en cuves ou un conditionnement (sous forme de colis cimentés par exemple) en vue d'un stockage de décroissance. Diminuer les rejets de tritium dans les effluents liquides de l'usine AREVA NC de La Hague suppose donc de concentrer au préalable les effluents liquides tritiés. Cela revient à récupérer une quantité infime d'eau tritiée (environ 250 grammes) dans plusieurs dizaines de milliers de tonnes d'eau. Les masses atomiques des molécules HTO et H_2O à séparer étant très proches, la séparation du tritium des effluents liquides tritiés est particulièrement délicate.

Dans le cas d'une usine de traitement du combustible usé, les difficultés liées à la récupération du tritium sont exacerbées par la forte dilution du tritium dans les effluents à traiter.

A ce jour, parmi les procédés de séparation isotopique de l'hydrogène mis en œuvre industriellement, aucun d'entre eux n'a été exploité à une échelle et avec des performances visées comparables à celles requises pour le traitement des effluents liquides tritiés de l'usine AREVA NC de La Hague qui sont :

- un grand facteur de décontamination en tritium afin de rendre les effluents liquides tritiés compatibles avec un rejet en mer,
- un grand facteur de concentration afin de rendre le flux concentré en tritium compatible avec l'entreposage en cuve ou le conditionnement sous forme de colis cimentés,
- une grande capacité permettant de traiter plusieurs dizaines de milliers de m^3/an d'eau tritiée fortement diluée.

L'application de ces procédés aux besoins de l'usine AREVA NC La Hague mettrait en œuvre des équipements aux proportions démesurées et aux consommations énergétiques très importantes et engendreraient également de risques de sûreté importants. Ceci explique qu'aucune usine de traitement (La Hague, Thorp, Rokkasho, Tokai) ne mette actuellement en œuvre un procédé de récupération du tritium dans les effluents liquides.

La concentration du tritium dans un flux de volume réduit serait une condition préalable à un hypothétique traitement industriel. Celle-ci pourrait être envisagée en recyclant l'eau tritiée pour la préparation des réactifs du procédé en remplacement de l'eau du réseau. Néanmoins, l'augmentation de la concentration et de l'inventaire en tritium dans l'usine qui en résulterait, engendrerait un risque accru de rejets de tritium dans les effluents gazeux. L'impact du rejet gazeux de tritium sur les groupes de référence étant localement 1000 fois supérieur à celui du rejet liquide, ceci conduirait à une augmentation de l'impact total des rejets de tritium de l'usine AREVA NC de La Hague allant à l'encontre de l'objectif global de réduction de l'impact.

Ceci explique pourquoi ces évolutions n'ont pas été recherchées, et ce, même pour réduire la quantité d'eau tritiée du réseau utilisée pour la préparation des réactifs du procédé.

Enfin, il pourrait être envisagé d'isoler le tritium en tête du procédé de traitement. Néanmoins, les procédés visant à extraire le tritium du combustible (voloxydation et pyrométallurgie) sont encore aujourd'hui à l'état de développement en laboratoire et sont très loin de la maturité industrielle indispensable avant d'envisager leur mise en œuvre.

Dans l'état actuel des technologies disponibles et au regard :

- du gain sur l'impact global de l'établissement restant inférieur à $\sim 0,1 \mu\text{Sv}$ dans tous les cas,
- du risque d'augmentation du rejet gazeux lié à la concentration du tritium liquide et à l'entreposage des solutions tritiées ou au stockage des déchets tritiés ultimes générés pouvant engendrer une augmentation de l'impact du site sur les groupes de référence,
- du risque d'augmentation des doses pour les travailleurs et le public résultant d'éventuels travaux de modification des usines,
- des incertitudes encore importantes sur le niveau de purification à atteindre (donc sur l'efficacité du procédé et la durée de vie des équipements),
- de la consommation d'énergie très importante associée aux procédés de traitement du tritium,
- de la prise en compte nécessaire de ce nouveau déchet dans les filières ANDRA,
- de l'impossibilité technique de réduire de manière significative le flux volumique des effluents tritiés dans l'usine AREVA NC de La Hague,
- de la différence d'échelle entre les installations de traitement du tritium existante et le volume d'effluent à traiter pour l'usine AREVA NC de La Hague (facteur > 50),
- de l'investissement prévisionnel supérieur au milliard d'euros,

AREVA NC considère que la pratique actuelle reste pour lors la mieux adaptée.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] SFRP, Le tritium et l'environnement
- [2] Présentation Powerpoint, Jacques FOOS
Le tritium, Colloque INTERCLI, 27 avril 2009, Cherbourg
- [3] AIEA – Technical Reports Series N°421
Management of Waste containing Tritium and Carbon-14, 2004
- [4] Présentation powerpoint, Bruno Fievet
IRSN, Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg
Impact de l'industrie nucléaire sur les espèces marines.
Colloque INTERCLI, 27 avril 2009, Cherbourg
- [5] H.A.C. McKay, Tritium Immobilization
Eur. Appl. Res. Rep., Nucl. Sci. 1(1979) pp.599–711
- [6] Bychkov, Feasibility Study of a Plant for LWR Used Fuel reprocessing by Pyrochemical Methods
Advanced nuclear fuel cycles and systems (GLOBAL 2007)
Boise - Idaho (United States), 9-13 Sep 2007
- [7] DOE/RL – 2004-11 Rev. 0
2004 Evaluation of Tritium Removal and Migration Technologies for Wastewater Treatment
- [8] US Patent 6'858'190
Heavy water production process and apparatus
- [9] Le Tritium - De l'Environnement à l'Homme
IRSN – Les éditions de Physique 1997
- [10] Tritium Isotope Separation, Gheorghe Vasaru
CRC Press, 1993
- [11] Brevet FR-A-2 230 040, Bernard
Procédé de traitement des combustibles irradiés pour limiter le rejet du tritium dans l'environnement 1973

Detritiation Systems at ITER

Les systèmes de détritiation d'ITER

Manfred Glugla,
Head of Fuel Cycle Engineering Division - ITER

1 | Introduction

ITER is the first fusion machine fully designed for operation with equimolar deuterium-tritium mixtures. The Tokamak vessel will be fuelled through Gas Puffing and Pellet Injection; the Neutral Beam heating system will use deuterium or protium¹.

Employing deuterium and tritium as fusion fuels has quite a number of consequences. First of all it will cause alpha heating of the plasma and the fusion reaction will eventually provide energy. Furthermore, due to the small burn-up fraction in the vacuum vessel, a closed deuterium-tritium loop is required along with the auxiliary systems necessary for safe handling of tritium. Multiple barriers are essential for the confinement of tritium within its respective processing components, and Atmosphere and Vent Detritiation Systems are crucial elements in the concept. A chemical plant - the ITER Tritium Plant - is needed for deuterium-tritium fuel processing.

2 | The ITER Deuterium-Tritium Fuel Cycle

A simplified block diagram of the ITER Fuel Cycle is given in Figure 1. The systems are designed to process considerable and unprecedented deuterium-tritium flow rates with high flexibility and reliability. High decontamination factors for effluent and release streams and low tritium inventories in all systems are needed to minimize emissions. Already at the level of a simple block diagram it becomes obvious that the Fuel Cycle systems are strongly interlinked.

1 | Introduction

ITER est la première machine de fusion entièrement conçue pour fonctionner avec des mélanges deutérium-tritium (D-T) équimolaires. La chambre à vide du Tokamak sera alimentée en combustible par ces mélanges sous forme d'injection de gaz et d'injection de glaçons, le système de chauffage par faisceau de neutres (d'atomes neutres) utilisera du deutérium ou du protium¹.

L'usage du deutérium et du tritium comme combustible de fusion implique un certain nombre de conséquences. En premier lieu, les particules alpha produites par la réaction de fusion contribueront au chauffage du plasma et la réaction de fusion en soi aboutira évidemment à une production d'énergie. Par ailleurs et en raison du faible taux de combustion dans la chambre à vide, il faut mettre en place une boucle deutérium-tritium fermée parallèlement aux systèmes auxiliaires requis pour manipuler le tritium en toute sécurité. Il est donc indispensable de mettre en place plusieurs barrières pour confiner le tritium dans les différents composants du procédé de traitement et les systèmes de détritiation de l'atmosphère et de la ventilation sont des éléments essentiels du concept. Le résultat est une installation chimique, le bâtiment tritium ITER, qui est prévu pour cet ensemble de traitement du combustible deutérium-tritium.

2 | Le cycle du combustible deutérium-tritium d'ITER

La figure 1 présente un schéma de principe simplifié du cycle du combustible d'ITER. Les systèmes sont conçus pour traiter avec souplesse et fiabilité des débits considérables de deutérium-tritium, sans précédent à ce jour. Pour minimiser les émissions, il faut à la fois des facteurs de décontamination élevés sur les acheminements des effluents et de rejets, ainsi que de faibles inventaires de tritium dans tous les systèmes. Dès le stade du schéma de principe, on constate que les systèmes du cycle du combustible sont étroitement liés les uns aux autres.

¹ The term protium is used to specifically refer to the lightest hydrogen isotope.

¹ Le terme protium désigne spécifiquement l'isotope le plus léger de l'hydrogène.

ITER is of experimental character in a large number of aspects. However, the Fuel Cycle systems need to be based on proven technologies and built and operated such that all parts have a very high reliability. In particular safe handling and confinement of tritium need to be assured under all conditions in support of the ITER mission and to develop fusion energy as a reliable resource. Performance specifications with respect to fuel supply rates and compositions, to pumping, to tritium removal and detritiation, to tritium recovery and even to side stream processing, e.g. tritiated water, have to be met from the beginning and for all operational modes of ITER.

Deuterium and tritium for ITER operations will essentially be supplied from external sources². By the time of the ITER D-T phase at least 20 – 25 kg of tritium will be available through ongoing extraction from heavy water moderated fission power plants. Tritium transported to ITER will be placed into a quarantined area in the Tritium Depot for subsequent assay by the Storage and Delivery System. It can then be returned to the Tritium Depot for storage if not immediately required in the Fuel Cycle. The Tritium Depot forms a separate Material Balance Area (MBA 2); all remaining processing parts of ITER belong to a common MBA (MBA 1). The Storage and Delivery System supplies the gases necessary for machine operation to Fuelling Gas Distribution (Gas Puffing and Pellet Injection) and to Neutral Beam heating.

ITER présente un caractère expérimental à de nombreux égards. Toutefois, les systèmes du cycle du combustible doivent faire appel à des technologies éprouvées et être conçus et exploités de manière à ce que l'ensemble de leurs composants présentent une très haute fiabilité. En particulier, il faut assurer la sûreté des opérations de manipulation et de confinement du tritium en toute situation, conformément à la mission d'ITER, et développer l'énergie de fusion pour en faire une ressource fiable. Les cahiers des charges relatifs aux taux d'alimentation en combustible et aux compositions de celui-ci, au pompage, à l'élimination du tritium et à la détritiation, à la récupération du tritium, voire même au traitement des flux secondaires, par exemple l'eau tritiée, doivent être respectés dès le départ et pour tous les modes d'exploitation d'ITER.

Le deutérium et le tritium destinés à l'exploitation d'ITER proviendront essentiellement de sources externes². D'ici la phase D-T d'ITER aux alentours de 2026, au moins 20 à 25 kg de tritium seront générés par l'extraction actuelle des centrales à fission modérée par eau lourde. Le tritium transporté vers ITER sera placé dans une zone de quarantaine, dans le dépôt de tritium, (suivre sur la figure 1) afin d'être analysé par le système de stockage et de distribution. Il pourra ensuite être renvoyé au dépôt de tritium pour y être stocké s'il n'est pas immédiatement nécessaire dans le cycle du combustible. Ce dépôt de tritium est une zone de bilan-matière distincte (MBA 2), l'ensemble des autres installations de traitement d'ITER faisant partie d'une MBA 1 commune. Le système de « Stockage et de Distribution » fournit les gaz nécessaires au fonctionnement du Tokamak à travers le système « Distribution des gaz du combustible » (Injection de Gaz et Injection de glaçons) et le chauffage par « Injection de Faisceau de Neutres ».

Figure 1: Block Diagram of the ITER Fuel Cycle

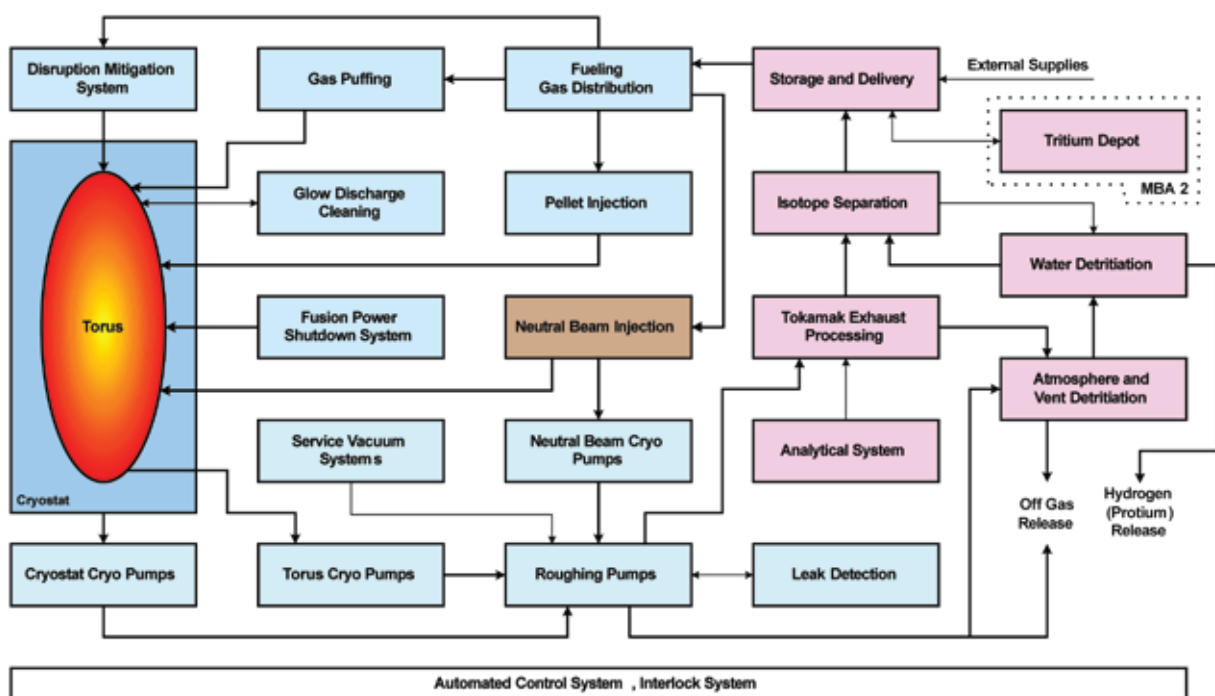


Figure 1 : Schéma de principe du cycle du combustible d'ITER

² All ITER member states are planning to install different breeding Test Blanket Modules. Tritium produced from interactions of fusion neutrons with lithium will need to be extracted and removed from blanket purge and cooling streams, accounted for and eventually merged into the ITER Fuel Cycle through Tokamak Exhaust Processing or through the Detritiation Systems in case of low amounts of tritium and high protium-to-tritium ratios. Nevertheless, the quantities of tritium made available from Test Blanket Modules will be very small and even not be comparable to the amounts of tritium decaying in ITER.

² Tous les pays membres d'ITER prévoient d'installer différents modules de couverture expérimentaux tritigènes. Le tritium généré par les interactions entre les neutrons de fusion et le lithium devra être extrait et éliminé des circuits de refroidissement et de purge de la couverture, pris en compte et, à terme, intégré au cycle du combustible d'ITER via le système de traitement des rejets du Tokamak ou les systèmes de détritiation, si les volumes de tritium sont faibles et les rapports protium/tritium élevés. Toutefois, les quantités de tritium provenant des modules de couverture expérimentaux seront minimes et non comparables aux volumes de tritium disparaissant par désintégration naturelle dans ITER.

The Analytical System assists in the characterization of the gases and in accountancy procedures. Tritium containing off-gases are moved by Roughing Pumps into the Tokamak Exhaust Processing system, while contaminated or tritium-free gases are routed through the Detritiation Systems or to the release point, respectively. Hydrogen isotopes removed in the Tokamak Exhaust Processing are transferred to the Isotope Separation System for fuel recovery, while the remaining detritiated waste gas is sent to the Detritiation Systems for decontamination purposes prior to release into the environment. The fuel loop is closed by return of unburned deuterium and tritium from the Isotope Separation System to the Storage and Delivery System.

With the exception of the Water Detritiation System no tritium process off-gases or potentially tritium-contaminated gases are released without being treated in the Detritiation Systems; the latter are based on the oxidation of tritium and tritiated compounds followed by trapping of the produced tritiated water. A particularity is the return line for the protium product of the Isotope Separation System into Water Detritiation System for ultimate decontamination (see Figure 1). Safe operation of the ITER Tritium Plant systems is through the Fuel Cycle Automated Control System and Interlock System, which forms part of the ITER central control, central safety and central interlock system.

Tritium processing systems and confinement systems are situated in the Tritium Plant building; Fueling Gas Distribution and the large and distributed Vacuum Systems are mainly located in the Tokamak building. Fuel Cycle systems play a key role in reliable plasma density and plasma detachment control; heat loads to the divertor are limited by injection of seeding gases. Pellet Injection is the main tool to supply fuel particles deep inside the plasma with high efficiency of delivery. Another important mission of Pellet Injection is to control the frequency of so called Edge Localized Modes (ELMs) and to avoid damages to the first wall.

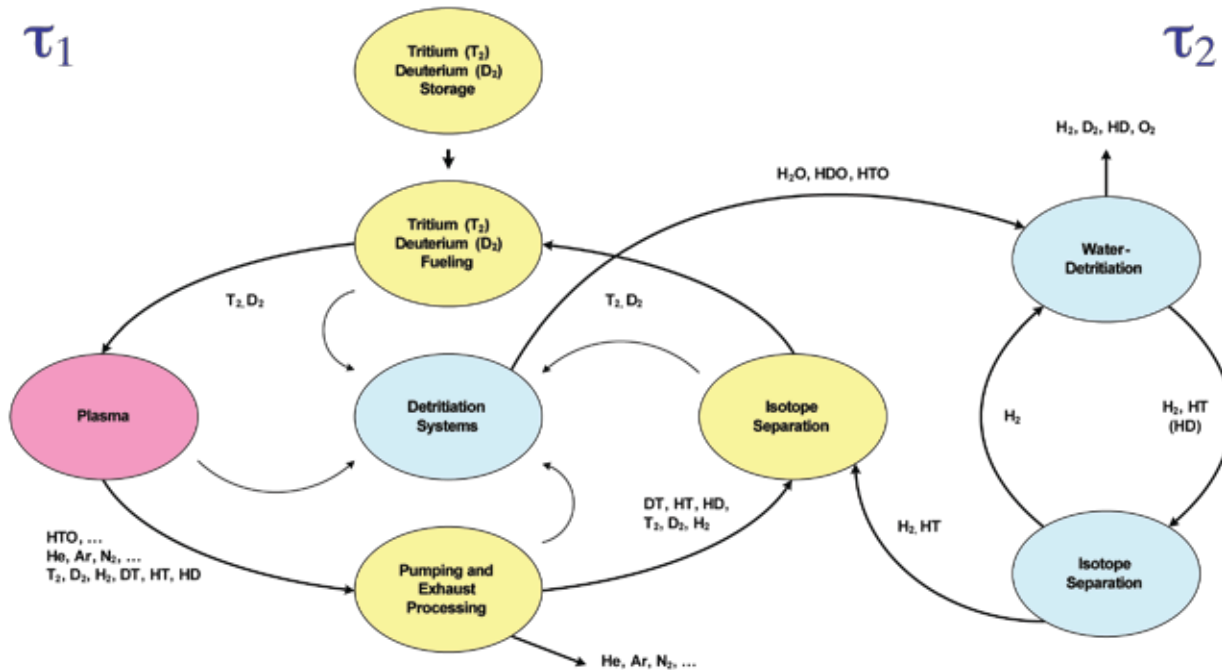
Le « Système d'Analyses » intervient dans la caractérisation des gaz et dans les procédures de comptabilisation. Les dégagements gazeux provenant directement du Tokamak et contenant du tritium sont envoyés vers le « Système de traitement des rejets du Tokamak » par des « Pompes primaires » alors que les gaz contaminés sont acheminés vers les « Systèmes de Détritiation de l'atmosphère et de ventilation ». Les gaz exempts de tritium sont acheminés vers le « Point de rejet ». Les isotopes de l'hydrogène récupérés dans le « Système de traitement des rejets du Tokamak » sont transférés vers le « Système de séparation isotopique » pour récupération du combustible alors que les autres effluents gazeux résiduels et détritiiés sont transférés à la « Détritiation de l'atmosphère et de la ventilation » à des fins de décontamination avant rejet dans l'environnement. La boucle du combustible est fermée par le retour du deutérium et du tritium imbrûlés du système de « Séparation isotopique » vers le système de stockage et de distribution.

A l'exception du « Système de détritiation d'eau », aucun dégagement gazeux issu du procédé tritium et aucun gaz potentiellement contaminé par le tritium ne sont évacués sans avoir été traités dans les systèmes de « Détritiation de l'atmosphère et de la ventilation », ces derniers fonctionnant par oxydation du tritium et des composés tritiés suivie d'un piégeage de l'eau tritiée produite. Particularité à signaler, une canalisation de retour renvoie le protium produit par le « Système de séparation isotopique » dans le « Système de détritiation d'eau » pour une ultime décontamination (voir figure 1). Une exploitation sûre du bâtiment Tritium est assurée à travers le « Système de Contrôle Automatique et Interlock » qui fait partie du système de contrôle central d'ITER, du contrôle de sûreté central et de l'interlock central.

Les systèmes de traitement du tritium et les systèmes de confinement sont situés dans le bâtiment tritium. Les systèmes de distribution des gaz combustibles et les vastes installations de vide distribué sont principalement situés dans le bâtiment du Tokamak. Les systèmes du cycle du combustible jouent un rôle déterminant dans l'obtention d'une densité nécessaire pour le plasma et le contrôle de ses propriétés physiques ; les charges thermiques supportées par le divertor sont limitées par l'injection de gaz d'ensemencement fourni aussi par ce système. L'injection de glaçons est le principal outil utilisé pour apporter les particules de combustible au cœur même du plasma, avec une grande efficacité de distribution. L'injection de glaçons remplit une autre mission importante : elle permet de contrôler la fréquence des modes localisés de bord (ELM), phénomènes propres au plasma, et d'éviter les détériorations de la première paroi.

As outlined above control of helium and impurity contents in the burning plasma requires continuous pumping of the neutral gas flux at the divertor and hence a continuous supply of fresh fuel to the Tokamak vessel. At a Fuel Cycle inventory level of about 2 kg ITER will eventually need to recycle large amounts of tritium and at turnovers orders of magnitude higher than any preceding tritium facility worldwide. Additional complexity comes from requirements to separate hydrogen isotopes, from the need to recover tritium from tritiated water and from off-gas detritiation prior to any discharge. Figure 2 shows a simplified flow chart of the ITER closed deuterium-tritium loop.

Figure 2: Simplified ITER Deuterium-Tritium Flow Chart



Recycling of deuterium and tritium in the main loop shown in the left part of Figure 2 can be characterized by a certain time constant τ_1 . Since the tritium inventory in the Fuel Cycle is above all determined by a prompt recycle a short τ_1 is one of the important design criteria, particularly for Tritium Plant systems.

Tritium bearing systems in ITER are usually confined through more than one physical barrier. Processing systems for example are housed in glove boxes with the glove box atmosphere served by a Detritiation System. In this way tritium from e.g. permeation, systems leaks, desorption during maintenance or incidents/accidents is captured through oxidation to water, followed by a (tritiated) water trap.

A unique feature of ITER is that also the Tokamak and Tritium Plant building atmospheres can be detritiated in case of tritium spills. For this purpose the atmospheres of the buildings are segregated into sectors as further explained in the next chapter.

Another unique feature of ITER is that the tritiated water generated in Detritiation Systems or from other sources is not given to waste but processed for the removal and recovery of tritium. This can not be compared with detritiation (tritium extraction) used in heavy water moderated fission reactors. While the heavy water is recycled after tritium stripping, the products from the Water Detritiation System in ITER need to be essentially tritium free for discharge into the environment; therefore in comparison to heavy water tritium extraction in fission plants the Water Detritiation System in ITER has to have at least five orders of magnitude higher decontamination factors.

Comme indiqué précédemment, le contrôle des teneurs en hélium (particules alpha produite par la réaction de fusion) et en impuretés (gaz d'ensemencement essentiellement) du plasma en combustion nécessite un pompage continu du flux de gaz qui se fait au niveau du divertor, et donc un approvisionnement continu de la chambre à vide du Tokamak en combustible neuf. Avec un inventaire du cycle du combustible de l'ordre de 2 kg, ITER aura à terme besoin de recycler une quantité de tritium considérable, des ordres de grandeur supérieurs à celle de toute autre installation de tritium dans le monde. La nécessité de séparer les isotopes de l'hydrogène, de récupérer le tritium de l'eau tritiée et de détritier les dégagements gazeux avant tout rejet accroît encore la complexité de l'installation. La figure 2 présente un schéma simplifié des process de la boucle deutérium-tritium fermée d'ITER.

Figure 2 : Schéma simplifié des process de la boucle deutérium-tritium d'ITER

Le recyclage du deutérium et du tritium dans la boucle principale représentée sur la gauche de la figure 2 peut être caractérisé par une constante de temps τ_1 . L'inventaire de tritium du cycle du combustible étant avant tout déterminé par la rapidité du recyclage, une constante τ_1 brève est un critère de conception important, en particulier pour les systèmes du bâtiment tritium.

Dans ITER, les systèmes renfermant du tritium sont généralement confinés par plusieurs barrières physiques. Les systèmes de traitement, par exemple, sont enfermés dans des boîtes à gants, l'atmosphère de ces boîtes à gants étant raccordée à un système de détritiation. Ainsi, le tritium provenant, par exemple, de la perméation, des fuites des systèmes, de la désorption lors des opérations de maintenance ou des incidents/accidents est capté par oxydation en eau puis traverse un piège à eau (tritiée).

L'une des caractéristiques propres à ITER est la possibilité de détritier l'atmosphère des bâtiments du Tokamak et du bâtiment tritium en cas de fuite de tritium. A cet effet, l'atmosphère des bâtiments est cloisonnée en secteurs, comme expliqué plus en détail dans le chapitre suivant.

Autre caractéristique remarquable d'ITER, l'eau tritiée issue des systèmes de détritiation ou d'autres sources n'est pas considérée comme un déchet mais traitée afin d'en retirer le tritium et le récupérer. Cette solution n'est pas comparable avec la détritiation (extraction du tritium) utilisée dans les réacteurs à fission modérés par eau lourde. Alors que l'eau lourde est recyclée après extraction du tritium, les produits provenant du système de détritiation d'eau d'ITER doivent être quasiment exempts de tritium avant d'être rejetés dans l'environnement. Par conséquent, le système de détritiation d'eau d'ITER doit présenter des facteurs de décontamination au moins cinq fois supérieurs à ceux des systèmes d'extraction du tritium de l'eau lourde mis en œuvre dans les centrales à fission.

Removal and recovery of tritium from tritiated water is eventually achieved through a direct link of the Water Detritiation System with the Isotope Separation System as shown in the left part of Figure 2 and further explained in Chapter 4. This loop is characterized by a time constant $\tau_2 > \tau_1$ but keeps the overall tritium inventory in ITER well within the limits foreseen.

La récupération du tritium de l'eau tritiée est finalement réalisée en reliant directement le système de détritiation d'eau au système de séparation isotopique, comme indiqué sur la gauche de la figure 2 et expliqué plus en détail au chapitre 4. Cette boucle est caractérisée par une constante de temps $\tau_2 > \tau_1$ mais elle maintient l'inventaire de tritium global d'ITER largement dans les limites prévues.

3 | ITER Tokamak Complex and Hot Cell Tritium Confinement

Confinement of tritium within its processing systems and components is in effect the most important safety objective. The basic target of confinement is to prevent spreading of radioactive material in normal operations and to maintain the level of contamination As Low As Reasonably Achievable (ALARA principle). In off-normal conditions radiological consequences for the operators, the public and the environment shall be below the general safety objectives of ITER.

For nuclear facilities in general multiple confinement systems are implemented. The First Confinement System is designed to prevent releases of radioactive materials into the accessible working areas. The Second Confinement System prevents releases of the contamination to the working areas accessible by non-authorized radiological workers, the general public and the environment.

The ventilation and confinement approach for the Tokamak Complex (Tokamak and Tritium Plant) and the Hot Cell of ITER follows the experience and practice of other tritium facilities worldwide and the confinement requirements and guidelines for nuclear facilities (see Figure 3).

3 | Confinement du tritium dans le complexe Tokamak d'ITER et dans l'installation de la cellule chaude

La fonction de sûreté principale est le confinement du tritium dans les systèmes et composants des différents procédés. L'objectif premier du confinement est de prévenir toute dispersion des matières radioactives lors de l'exploitation normale et de maintenir un niveau de contamination aussi bas que possible, conformément au principe ALARA (*As Low As Reasonably Achievable*). Dans des conditions incidentelles, les conséquences radiologiques pour les opérateurs, le public et l'environnement doivent demeurer dans des niveaux inférieurs aux Objectifs Généraux de Sûreté d'ITER.

En règle générale, des systèmes de confinement multiples sont mis en œuvre dans les bâtiments nucléaires. Le premier système de confinement est conçu pour prévenir les rejets de matières radioactives dans les zones de travail accessibles. Le deuxième système de confinement vise à empêcher les rejets de contaminants dans les zones de travail accessibles aux personnels non habilités à travailler dans les zones radiologiques, au grand public et en contact avec l'environnement.

Le concept de ventilation et de confinement du complexe Tokamak (Tokamak et bâtiment tritium) et le bâtiment des cellules chaudes d'ITER se fonde sur l'expérience et la pratique des autres laboratoires de tritium dans le monde, ainsi que sur les exigences de confinement et les recommandations relatives aux installations nucléaires (voir figure 3).

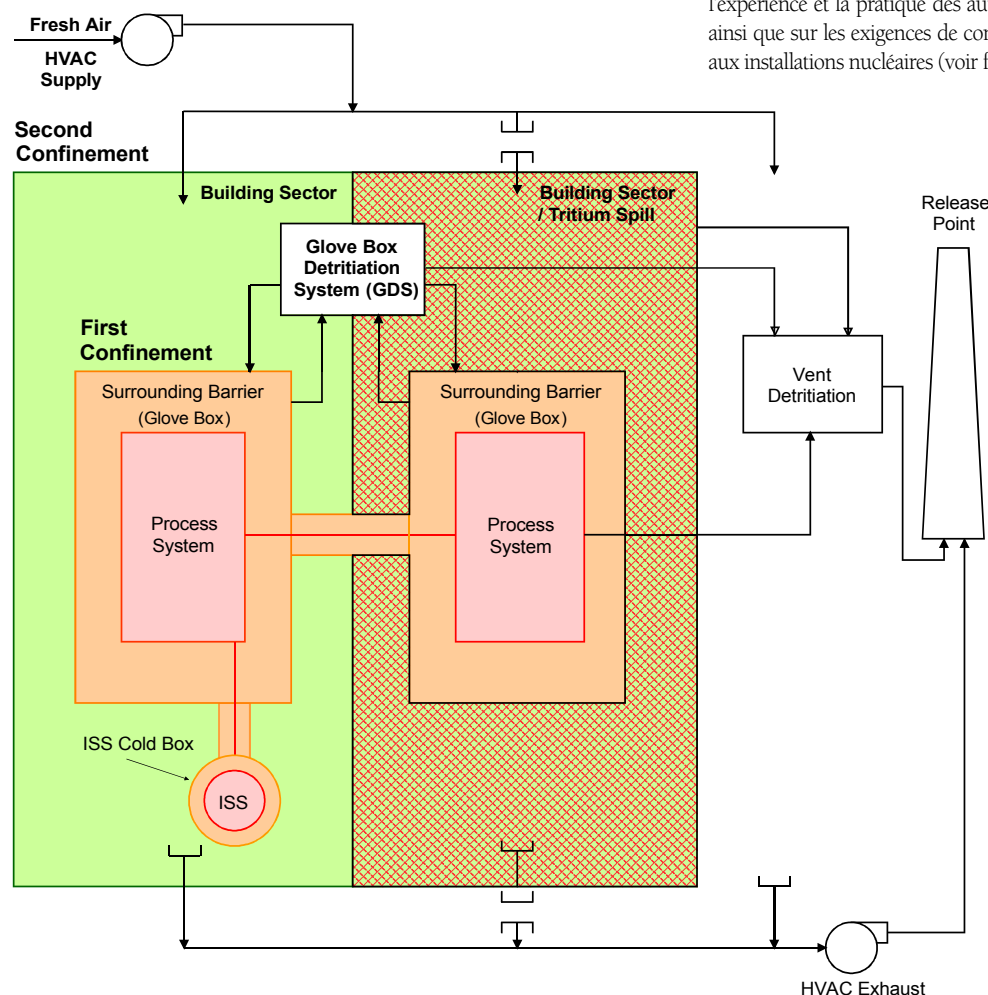


Figure 3: ITER Ventilation and Confinement Concept

Figure 3 : Le concept de ventilation et de confinement d'ITER

First Confinement is by the process (tritium-bearing) systems providing the initial physical barrier, which can be within a surrounding barrier, typically a glove box, a coaxial tube for interconnecting pipe work or a hard shell in case of cryogenic components. The latter at the same time offers thermal insulation through evacuation of the interspace. An example of this is the Isotope Separation System (ISS) in Figure 3. The atmosphere of glove boxes is served by a Glove Box Detritiation System, thereby providing confinement not only by a physical barrier but also dynamically through the removal and trapping of spread tritium.

Dynamic confinement through maintenance of sub-atmospheric pressure in nuclear buildings provides Second Confinement. For this purpose the Tokamak Complex buildings are segregated into sectors. In case of tritium spill into a sector (see right hand side of Figure 3) Heating, Ventilation and Air Conditioning (HVAC) is automatically isolated via Safety Tritium Monitors and the Detritiation System is put into service. Sub-atmospheric pressure is maintained at a lower level compared to HVAC and extracted air is processed through Vent Detritiation prior to exhausting to the environment. No off-gases from tritium processing systems are released without being processed beforehand by Vent Detritiation.

Figure 4 shows a block diagram of the Tokamak Complex confinement configuration. A Detritiation System provides both the Vent Detritiation (VD) and the Atmosphere Detritiation (AD) function. The Vent Detritiation function is "once through then out" while the Atmosphere Detritiation function refers to a recycling mode.

The volumes to be served can be divided into three categories: Type 1, Type 2 and Type 3. Galleries or rooms in the Tritium Plant building are typical examples for Type 1. Under normal operations these volumes are served by HVAC; in case of contamination HVAC will be isolated and the Detritiation System will provide sub-atmospheric pressure control and Vent Detritiation. Tritium processing systems such as Tokamak Exhaust Processing require Vent Detritiation for primary off-gases and belong to Type 2, while Type 3 refers to volumes which under certain operating conditions require both Vent and Atmosphere Detritiation.

Le premier niveau de confinement est assuré par les systèmes du process renfermant du tritium, qui constituent la première barrière physique. Ces systèmes peuvent eux-mêmes être entourés d'une barrière, généralement une boîte à gants, un tube coaxial dans le cas d'un réseau de canalisations raccordées les unes aux autres ou un récipient dans le cas de composants cryogéniques. Cette dernière apporte également une isolation thermique en faisant le vide dans l'espace intermédiaire. Le système de séparation isotopique (ISS) représenté à la figure 3 en constitue un bon exemple. L'atmosphère des boîtes à gants est raccordée à un système de détritiation des boîtes à gants. Ainsi, le confinement est assuré par une barrière physique mais il est également dynamique grâce à l'élimination et au piégeage du tritium dispersé.

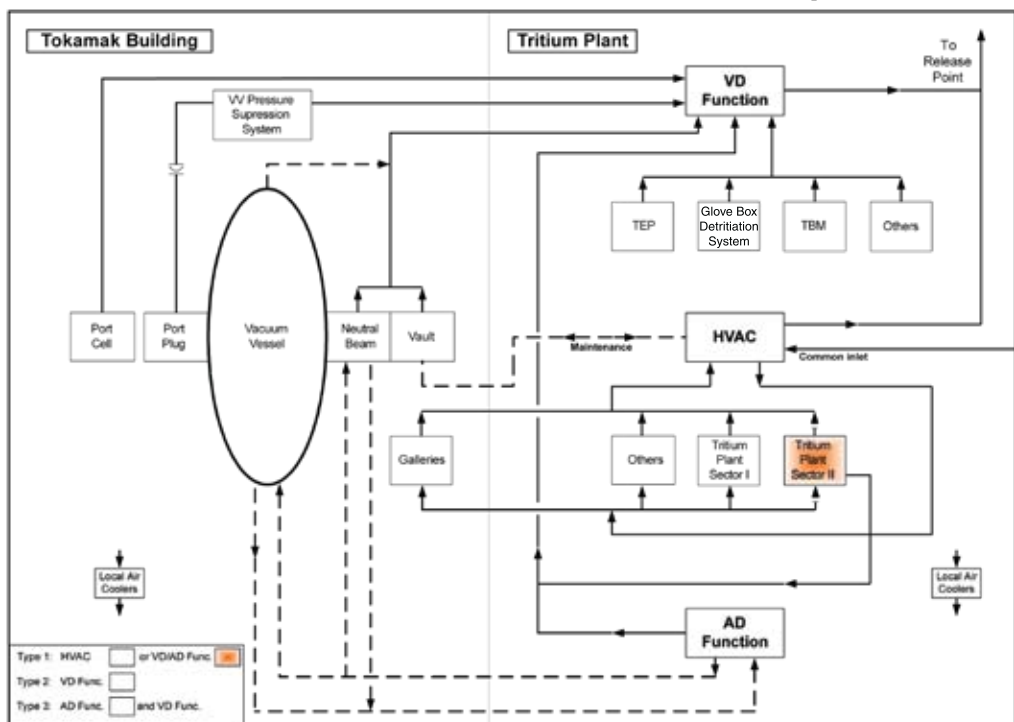
Le confinement dynamique par maintien d'une pression négative dans les bâtiments nucléaires apporte un deuxième niveau de confinement. A cet effet, les bâtiments du complexe Tokamak sont cloisonnés en secteurs. En cas de fuite de tritium dans un secteur (voir la partie droite de la figure 3), le système de chauffage, ventilation et conditionnement d'air (HVAC) est automatiquement isolé par les capteurs du système de sûreté et le système de détritiation est mis en route. La pression négative est maintenue à un niveau inférieur à la pression du système HVAC et l'air extrait est traité par détritiation de la ventilation avant d'être rejeté dans l'environnement. Aucun dégagement gazeux provenant des systèmes de traitement du tritium n'est évacué sans avoir été préalablement traité par détritiation de la ventilation.

Le schéma de principe de la figure 4 représente la configuration de confinement du complexe Tokamak. Le système de détritiation combine les fonctions de détritiation de la ventilation (DV) et de détritiation de l'atmosphère (DA). La fonction de détritiation de la ventilation est à « passage unique puis évacuation » alors que la fonction de détritiation de l'atmosphère fonctionne en mode de recyclage.

Les volumes à traiter peuvent être répartis en trois catégories : type 1, type 2 et type 3. Les galeries ou locaux du bâtiment tritium correspondent au type 1. En exploitation normale, ces volumes sont raccordés au système HVAC. En cas de contamination, le système HVAC est isolé et le système de détritiation assure le contrôle de la pression négative et la détritiation de la ventilation. Les systèmes de traitement du tritium tels que le système de traitement des rejets du Tokamak nécessitent une détritiation de la ventilation pour les dégagements gazeux primaires et font partie du type 2, alors que le type 3 correspond aux volumes qui, dans certaines conditions d'exploitation, exigent à la fois une détritiation de la ventilation et de l'atmosphère.

Figure 4: ITER Tokamak Complex Confinement and Detritiation Systems

Figure 4 : Systèmes de détritiation et confinement du complexe Tokamak ITER



The HVAC and Detritiation System for the Tokamak Complex are located in the Tritium Plant building. Since HVAC is not specifically designed for removal of all the heat dissipated in rooms, Local Air Coolers are installed as required.

Le système HVAC et le système de détritiation du complexe Tokamak sont situés dans le bâtiment tritium. Le système HVAC n'étant pas spécifiquement conçu pour évacuer la totalité de la chaleur dissipée dans les locaux, des refroidisseurs d'air sont installés localement en fonction des besoins.

4| The ITER Water Detritiation System and its Link to Isotope Separation

As outlined in Chapter 3 Atmosphere and Vent Detritiation at ITER is based on catalytic oxidation of molecular tritium and tritiated gases followed by trapping of the produced tritiated water. The Tritium Plant of ITER will be the first facility equipped with a Water Detritiation System capable of processing tritiated water for tritium removal and recovery while producing effluent streams which are basically tritium free.

The ITER Water Detritiation System comprises two parts: one includes the different tritiated water holding tanks located in the Tritium Plant building for temporary storage of tritiated water as it appears during normal operation, during maintenance or during incidental and accidental conditions; the second includes the components and systems for processing such water. The physicochemical principle of the Water Detritiation System is the CECE (Combined Electrolysis Catalytic Exchange) process with a Liquid Phase Catalytic Exchange (LPCE) column. This technology includes converting tritiated water to gaseous oxygen and hydrogen, decontamination of these gases and their discharge to the environment. The essentials of the CECE/LPCE process are depicted in Figure 5.

4| Liaison entre le système de détritiation d'eau d'ITER et la séparation isotopique

Comme indiqué au chapitre 3, la détritiation de l'atmosphère et de la ventilation d'ITER est effectuée par oxydation catalytique du tritium moléculaire et des gaz tritiés suivie d'un piégeage de l'eau tritiée ainsi produite. Le bâtiment tritium d'ITER sera la première installation équipée d'un système de détritiation d'eau capable de traiter l'eau tritiée pour éliminer et récupérer le tritium tout en produisant des flux d'effluents quasiment exempts de tritium.

Le système de détritiation d'eau d'ITER se compose de deux parties : la première partie se compose des différentes cuves de stockage d'eau tritiée situées dans le bâtiment tritium, qui permettent de stocker temporairement l'eau tritiée produite durant l'exploitation normale, les opérations de maintenance ou les situations incidentelles ou accidentelles. La deuxième partie regroupe les composants et systèmes de traitement de cette eau. Le principe physico-chimique utilisé par le système de détritiation d'eau est le procédé combiné d'électrolyse et d'échange catalytique (CECE, Combined Electrolysis Catalytic Exchange) sur colonne d'échange catalytique en phase liquide (LPCE, Liquid Phase Catalytic Exchange). Cette technologie comporte trois grandes étapes : conversion de l'eau tritiée en oxygène gazeux et en hydrogène, décontamination de ces gaz puis rejet dans l'environnement. Les principales composantes du procédé CECE/LPCE sont décrites à la figure 5.

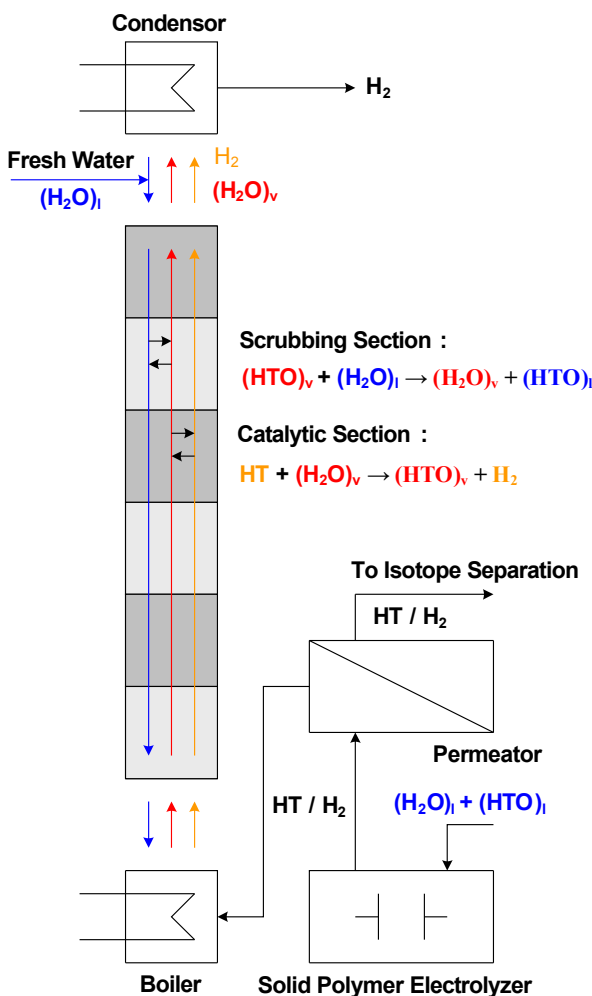


Figure 5: Essentials of the CECE Technology with an LPCE column

Figure 5 : Principales composantes de la technologie CECE sur colonne LPCE

In principle tritiated water from the holding tanks is transferred to an electrolyzer³ and converted to gaseous hydrogen (and oxygen) through an electrolysis process. A small fraction of the hydrogen is transferred to the Isotope Separation System; most of the hydrogen is fed into the bottom of a Liquid Phase Catalytic Exchange (LPCE) column. At the top of the column fresh water at a flow rate comparable to the tritiated water feed flow rate is introduced. The detritiation and decontamination process is arranged in a counter flow mode along the LPCE column and promoted by a hydrophobic catalyst and an inert packing material. On the hydrophobic catalyst, molecular tritiated hydrogen exchanges with water vapor yielding tritiated water vapor and molecular hydrogen (protium). Distillation is supported inside of the LPCE column in sections ("scrubbing") filled with an inert packing material: There tritiated water vapor interacts with regular liquid water to give regular water vapor and liquid tritiated water. Eventually a logarithmic tritium concentration profile is attained along the length of the LPCE column.

The CECE process with an LPCE column thus has two liquid feed streams, namely tritiated water and fresh water. It is important to note that there is no liquid product: all the water is split into hydrogen and oxygen in the electrolyzers. Since the feed flow rates for fresh water and tritiated water are comparable the electrolyzer capacity required is roughly twice the tritiated water throughput.

Three CECE/LPCE product streams need to be considered. The gaseous oxygen from the electrolyzer is released to the environment after removal of tritiated water vapor; the latter is simply returned into the process as liquid. The hydrogen stream generated by the electrolyzer is split into two streams. A small part is fed to the Isotope Separation System for tritium recovery; the main fraction is fed into the LPCE column, decontaminated and then discharged to the atmosphere.

The link between the ITER Water Detritiation System and the cryogenic Isotope Separation System is further illustrated in Figure 6.

En principe, l'eau tritiée provenant des cuves de stockage est transférée vers un électrolyseur³ puis transformée en hydrogène gazeux (et oxygène) par un procédé d'électrolyse. Une petite fraction de l'hydrogène est orientée vers le système de séparation isotopique, la majeure partie étant dirigée vers le fond d'une colonne d'échange catalytique en phase liquide (LPCE). De l'eau douce est introduite par le haut de la colonne à un débit comparable au débit d'arrivée de l'eau tritiée. Le processus de détritiation et de décontamination fonctionne selon un principe d'échange à contre-courant le long de la colonne LPCE et il est activé par un catalyseur hydrophobe et un garnissage inerte. Les échanges entre l'hydrogène tritié moléculaire et la vapeur d'eau sur le catalyseur hydrophobe produisent de la vapeur d'eau tritiée et de l'hydrogène moléculaire (protium). La distillation est effectuée à l'intérieur de la colonne LPCE, dans des zones remplies d'un garnissage inerte (« lavage »). À ce niveau, la vapeur d'eau tritiée interagit avec l'eau liquide ordinaire pour produire de la vapeur d'eau ordinaire et de l'eau tritiée liquide. Au final, on obtient un profil de concentration en tritium logarithmique sur toute la longueur de la colonne LPCE.

Le procédé CECE sur colonne LPCE fait donc intervenir deux flux d'alimentation liquides : l'eau tritiée et l'eau douce. Il est important de souligner l'absence de produit liquide. En effet, la totalité de l'eau est décomposée en hydrogène et en oxygène dans les électrolyseurs. Les débits d'alimentation en eau douce et en eau tritiée étant comparables, la capacité des électrolyseurs doit être environ deux fois supérieure au débit d'eau tritiée.

Trois flux de produits du procédé CECE/LPCE doivent être pris en compte. L'oxygène gazeux provenant de l'électrolyseur est rejeté dans l'environnement après élimination de la vapeur d'eau tritiée, cette dernière étant simplement réinjectée dans le processus sous forme liquide. Le flux d'hydrogène généré par l'électrolyseur est divisé en deux flux. Une petite partie est orientée vers les systèmes de séparation isotopique afin de récupérer le tritium alors que la fraction principale est dirigée vers la colonne LPCE, décontaminée puis rejetée dans l'atmosphère.

La liaison entre le système de détritiation d'eau d'ITER et le système de séparation isotopique cryogénique est illustrée plus en détail à la figure 6.

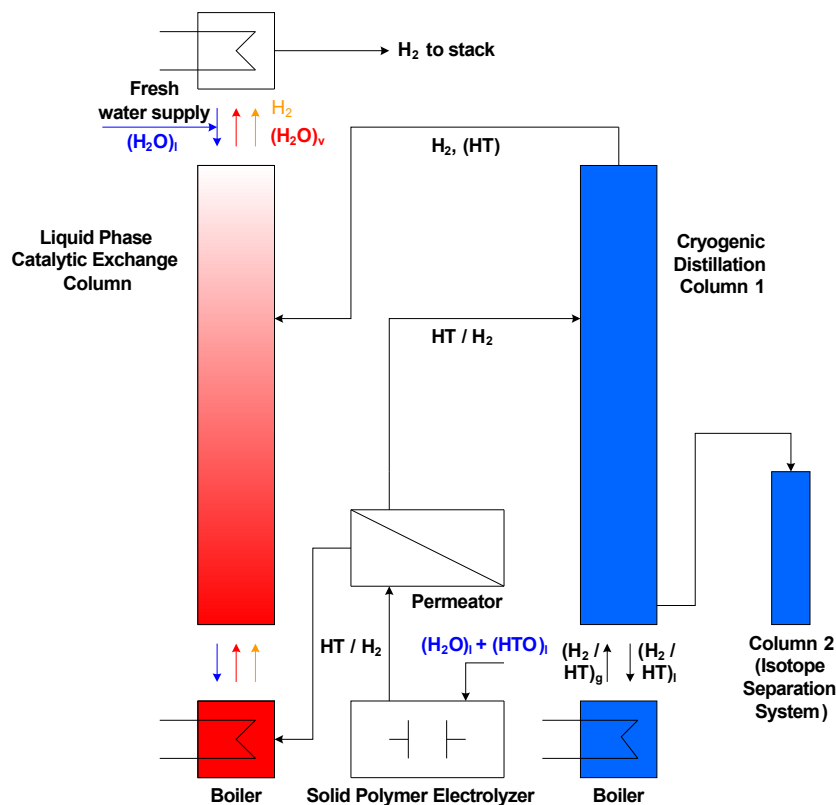


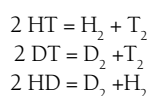
Figure 6: Block Diagram of ITER Water Detritiation and its Link to Isotope Separation

Figure 6 : Schéma de principe du système de détritiation d'eau d'ITER et liaison avec la séparation isotopique

³ The electrolyzers of the ITER Water Detritiation System are based on solid polymer membrane technology rather than on potassium hydroxide as an electrolyte. The production of liquid electrolyte waste is thereby strictly avoided.
³ Les électrolyseurs du système de détritiation d'eau d'ITER utilisent une technologie à membrane polymère solide plutôt que l'hydroxyde de potassium comme électrolyte. Cette solution permet d'éviter la production de résidus d'électrolyte liquides.

A so-called permeator⁴ is employed to split the tritiated hydrogen stream into two fractions, transferred to the bottom of the LPCE column of the Water Detritiation System and into one of the cryogenic Isotope Separation System distillation columns, respectively. Since the protium stream from the top of the Isotope Separation System column can still contain some residual tritium it is not discharged directly but is routed through the LPCE column. Thereby tritium effluents from ITER tritium processing systems are minimized.

The cryogenic Isotope Separation System concept relies on the slight differences in boiling points (within the 20K to 25K range at atmospheric pressure) for the six isotopologues of protium, deuterium and tritium. These slight differences in volatility of the species permit separation of isotopes by distillation with the heavier species - tritium - at the bottom, and the most volatile species - protium - at the top of a distillation column. The ITER system consists of a cascade of cryogenic distillation columns with feeding locations appropriately defined according to the hydrogen isotope concentrations in the streams to be processed. In order to achieve the required quality of the tritium and deuterium product streams, several equilibrators are used along the columns in order to promote the following isotopic exchange reaction:



Deuterium and tritium products at required qualities are transferred to the Storage and Delivery System. The exact isotope composition of the (protium) stream to the Water Detritiation System can vary; it may contain deuterium at significant concentrations. However, the tritium content will be in any case sufficiently low for LPCE column operation.

In essence the Water Detritiation System is employed for tritium removal from tritiated water and to produce a decontaminated hydrogen stream for discharge to the environment. Tritium is eventually recovered due to the link to the Isotope Separation System, without the latter discharging directly to the environment.

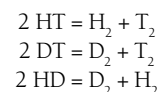
The Water Detritiation System is an important element for tritium confinement at ITER. Holding tanks provide capacity for storing large quantities of tritiated water and act as an intermediate stage for movement and blending of the tritiated water. However, Water Detritiation System operation is not safety important and its temporary non-availability does not compromise tritium confinement.

The total capacity of the Water Detritiation System was evaluated for processing the amounts of tritiated water which will be generated during normal operation, including maintenance. In case of incidental/accidental events leading to the generation of larger amounts of tritiated water by operation of the tritium confinement systems, large holding tanks are available to store the water until it can be processed. The tanks capacity is determined by the throughput of the Detritiation System (for both atmosphere and vent detritiation operations) needed to recover from the incident/accident in a reasonable amount of time.

The Water Detritiation System of ITER will be modular and will eventually have a processing capacity of up to 60 kg tritiated water per hour; tritium feed concentrations between 10^7 Bq.kg^{-1} and $10^{13} \text{ Bq.kg}^{-1}$ will be accepted by the system. However, an average of 0.37 TBq.kg^{-1} (10 Ci per kg) is the design target feed concentration for the Water Detritiation System.

Un perméateur⁴ est utilisé pour diviser le flux d'hydrogène tritié en deux fractions, qui sont respectivement transférées vers le fond de la colonne LPCE du système de détritiation d'eau et vers l'une des colonnes de distillation du système de séparation isotopique cryogénique. Le flux de protium provenant du haut de la colonne du système de séparation isotopique étant susceptible de contenir un peu de tritium résiduel, il n'est pas rejeté directement mais acheminé au travers de la colonne LPCE. Ceci permet de minimiser les effluents de tritium produits par les systèmes de traitement du tritium d'ITER.

Le concept du système de séparation isotopique cryogénique est fondé sur la légère différence de point d'ébullition (variant dans une plage de 20 à 25 K à la pression atmosphérique) des six isotopologues du protium, du deutérium et du tritium. Ces légères variations de volatilité des espèces permettent de séparer les isotopes par distillation, les espèces les plus lourdes (tritium) et les plus volatiles (protium) migrant respectivement vers le fond et vers le sommet de la colonne de distillation. Le système d'ITER se compose d'une cascade de colonnes de distillation cryogénique dont les points d'alimentation sont définis en fonction de la concentration des isotopes de l'hydrogène dans les flux à traiter. Pour obtenir des flux de produits tritium et deutérium présentant la qualité requise, plusieurs systèmes d'équilibrage sont utilisés le long des colonnes afin d'activer les réactions suivantes d'échange d'isotopes :



Les produits deutérium et tritium présentant la qualité requise sont transférés vers le système de stockage et de distribution. La composition isotopique précise du flux (de protium) qui arrive au système de détritiation d'eau peut varier. Ce flux est susceptible de contenir des concentrations de deutérium non négligeables. Toutefois, la teneur en tritium sera dans tous les cas suffisamment faible pour permettre l'utilisation d'une colonne LPCE.

Par définition, le système de détritiation d'eau est utilisé pour éliminer le tritium de l'eau tritiée et pour produire un flux d'hydrogène décontaminé destiné à être rejeté dans l'environnement. Le tritium est finalement récupéré grâce à la liaison avec le système de séparation isotopique, sans que ce dernier ne déverse directement ses produits dans l'environnement.

Le système de détritiation d'eau est un élément important du confinement du tritium à ITER. Les cuves de stockage permettent de stocker des volumes importants d'eau tritiée et constituent une étape intermédiaire dans le déplacement de l'eau tritiée. Toutefois, le fonctionnement du système de détritiation d'eau n'a pas d'incidence sur la sûreté et son indisponibilité temporaire ne compromet pas le confinement du tritium.

La capacité totale du système de détritiation d'eau a été évaluée afin de traiter les volumes d'eau tritiée qui seront générés durant l'exploitation normale, maintenance comprise. En cas d'événement incidentel/accidentel aboutissant à la production de volumes d'eau tritiée plus importants en raison de la mobilisation des systèmes de confinement du tritium, de grosses cuves de stockage sont disponibles pour stocker l'eau jusqu'à ce qu'il soit possible de la traiter. La capacité de ces cuves est déterminée par le débit du système de détritiation (pour les opérations de détritiation de l'atmosphère et de la ventilation) nécessaire pour revenir à la normale dans un délai raisonnable après l'incident/accident.

Le système de détritiation d'eau d'ITER sera modulaire et offrira à terme une capacité de traitement atteignant 60 kg d'eau tritiée par heure. Il acceptera des concentrations d'alimentation en tritium de 10^7 Bq.kg^{-1} à $10^{13} \text{ Bq.kg}^{-1}$ (10 TBq.kg^{-1}). Toutefois, une concentration d'alimentation théorique moyenne de $0,37 \text{ TBq.kg}^{-1}$ (10 Ci par kg) est visée pour le système de détritiation d'eau.

⁴ Palladium-silver metal membranes are selectively permeable for hydrogen and virtually impenetrable for other species. Highly pure hydrogen is therefore provided to the Isotope Separation System.

⁴ Les membranes métalliques palladium/argent présentent une perméabilité sélective à l'hydrogène et sont quasiment imperméables aux autres espèces. Ainsi, l'hydrogène transféré vers le système de séparation isotopique est extrêmement pur.

5| Conclusion

Detritiation Systems are key elements of tritium confinement at ITER. In its Vent Detritiation function sub-atmospheric pressure in the required volumes according to zoning considerations is provided, and gases are detritiated prior to their discharge into the environment. In its Atmosphere Detritiation function tritium released into certain volumes during normal operations, maintenance or in incidental/accidental events is collected. The detritiation of room atmospheres in Tokamak Complex building sectors is a unique feature of ITER not used in other tritium facilities of today's design. Another unique element of ITER is the Water Detritiation System interlinked to the cryogenic Isotope Separation System. In this way tritium is removed and eventually recovered from tritiated water while producing a decontaminated hydrogen and oxygen streams which can be released with minimized impact to the environment.

REFERENCES

- 1.) I. Cristescu et. al., Fusion Sci. Technol. 54, 440 (2008).
- 2.) I. Cristescu, I. R. Cristescu, L. Dörr, M. Glugla, D. Murdoch, Fusion Sci. Technol. 52, 667 (2007).
- 3.) M. Glugla, A. Antipenkov, S. Beloglazov, C. Caldwell-Nichols, I.R. Cristescu, I. Cristescu, C. Day, L. Doerr, J.-P. Girard, E. Tada, Fusion Eng. Design 82, 472 (2007).

5| Conclusion

Les systèmes de détritiation sont des éléments clés du confinement du tritium à ITER. Pour la détritiation de la ventilation, une pression négative est appliquée dans les volumes concernés selon des critères de zonage et les gaz sont détritiiés avant leur rejet dans l'environnement. La détritiation de l'atmosphère des locaux consiste à recueillir le tritium rejeté dans certains volumes lors de l'exploitation normale, de la maintenance ou des événements incidentels/accidentels. La détritiation de l'atmosphère des locaux du bâtiment du complexe Tokamak est une caractéristique propre à ITER, que l'on ne retrouve dans aucun autre laboratoire tritium de conception actuelle. ITER présente une autre caractéristique exclusive : le système de détritiation d'eau et le système de séparation isotopique cryogénique sont reliés l'un à l'autre. Ainsi, le tritium est éliminé de l'eau tritiée et finalement récupéré et les flux d'hydrogène et d'oxygène décontaminés obtenus peuvent être rejetés dans l'environnement avec un impact minime.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- 1.) I. Cristescu et. al., Fusion Sci. Technol. 54, 440 (2008).
- 2.) I. Cristescu, I. R. Cristescu, L. Dörr, M. Glugla, D. Murdoch, Fusion Sci. Technol. 52, 667 (2007).
- 3.) M. Glugla, A. Antipenkov, S. Beloglazov, C. Caldwell-Nichols, I.R. Cristescu, I. Cristescu, C. Day, L. Doerr, J.-P. Girard, E. Tada, Fusion Eng. Design 82, 472 (2007).

Retour d'expérience du procédé de détritiation de Valduc

D. Leterq¹, P. Bussière²

¹CEA DIF

²CEA Valduc

Sur le plan international, c'est aux Etats-Unis qu'ont été mises en place les premières unités de détritiation d'atmosphère de boîtes à gants. Ce développement technologique a été stimulé par le durcissement de la réglementation américaine sur les rejets dans les années 70. Pour faire face à cette nouvelle exigence, la société Engelhard, spécialisée dans le traitement des gaz, met alors au point un catalyseur adapté à l'oxydation de traces de tritium gazeux. L'eau générée peut être facilement piégée, contrairement au tritium gazeux, particulièrement volatil. Ce catalyseur, à base de métaux précieux, possède en particulier une grande surface d'échange (200 m² par gramme), propice à la réaction chimique d'oxydation. Engelhard construit autour de ce principe un procédé complet de traitement qui sera repris par l'ensemble des installations Tritium dans le monde. Il consiste à préchauffer le gaz à traiter, à convertir le tritium présent en eau dans un réacteur d'oxydation, à refroidir le gaz puis à piéger l'eau produite sur de la zéolithe, matériau avide d'humidité. Le gaz ainsi décontaminé est recyclé ou bien rejeté dans l'environnement. Le facteur d'épuration affiché est de l'ordre de 1000.

A Valduc, au début des années 70, les procédés de traitement du tritium sont implantés dans des caissons ventilés, de taille équivalente à des cellules. Les opérations de maintenance doivent être réalisées en scaphandre à l'intérieur du caisson lui-même. Les boîtes à gants font progressivement leur apparition à la fin des années 70. Elles sont ventilées et seules quelques unes - celles qui présentent l'inventaire le plus élevé - possèdent un système de détritiation dédié, du type de celui conçu par Engelhard. La capacité de traitement est alors limitée à 60 Nm³/h. La détritiation se généralise au début des années 90, avec la création de cinq réseaux de ventilation de boîtes à gants possédant chacun leur propre système de traitement. Au total, près d'une centaine de boîtes vont ainsi bénéficier d'un système de détritiation d'atmosphère. La capacité totale de traitement s'élève à 1200 Nm³/h. Enfin, en 2000, une nouvelle unité de détritiation est mise en place. Elle permet de traiter l'air rejeté par les cinq réseaux de détritiation et joue donc un rôle de traitement de deuxième niveau. Elle réduit encore le niveau d'activité en tritium avant son évacuation à la cheminée et permet également de pallier un éventuel dysfonctionnement du premier niveau de détritiation.

Sur le plan technique, le fonctionnement des unités de détritiation peut se faire « en ligne », auquel cas le débit d'air introduit est rejeté à la

cheminée après traitement, ou « en boucle », mode pour lequel l'air est recyclé. Le premier mode est préféré quand on souhaite maintenir un très faible niveau de contamination en boîte à gants, le recyclage conduisant à réintroduire dans le réseau la faible proportion de tritium non convertie.

La température du réacteur d'oxydation est portée à 200°C pour le premier étage de traitement, afin d'éviter l'adsorption de la vapeur d'eau ou d'éventuel monoxyde de carbone sur le catalyseur, espèces inhibitrices de la réaction. Pour le deuxième étage, la température atteint 450 °C, seuil qui permet de décomposer les hydrocarbures tritiés produits par l'interaction du tritium avec les matières organiques. Des essais de qualification ont démontré que le rendement de conversion du tritium en eau était supérieur à 99,8 %. L'atmosphère d'une boîte à gants revient à son niveau normal au plus tard six heures après l'occurrence d'un pic de concentration volumique en tritium.

Les règles d'exploitation de l'installation imposent qu'une boîte à gants soit détritiable quand l'inventaire présent est supérieur à 1000 Ci (37 TBq). Elle doit être détritiiée quand l'activité volumique en tritium dépasse le seuil de 5500 LPCA (1,1 GBq/m³). Le raccordement au système de détritiation peut être permanent ou réalisé de façon automatique lorsque le seuil est atteint. Le taux de renouvellement de l'atmosphère doit être supérieur à 1 dans une boîte à gants détritiiée.

Une surveillance centralisée des caractéristiques de l'atmosphère des boîtes à gants (activité tritium, pression, débit, hygrométrie, teneurs en hydrogène et oxygène) est assurée au moyen d'un système informatisé de supervision. Celui-ci permet d'identifier en temps réel le moindre dysfonctionnement et assure l'archivage des données.

L'impact de la mise en place des systèmes de détritiation à Valduc peut être apprécié à partir de la courbe des rejets annuels du centre. Ils sont passés de plusieurs dizaines de grammes par an dans les années 70 à des niveaux inférieurs au gramme dans les années 2000, correspondant à environ 20 % de l'autorisation annuelle de rejet. Par ailleurs, depuis 1995, aucun rejet incidentel n'a atteint le seuil d'information à l'autorité de sûreté fixé à 500 Ci (18,5 TBq).

La mise en œuvre de systèmes de détritiation entraîne le besoin de gérer les quantités d'eau piégées sur la zéolithe. Cette eau est récupérée en faisant circuler un flux d'air sec à 250°C dans la zéolithe. La vapeur est ensuite condensée dans un piège thermique refroidi à 7°C. A l'eau tritiée produite dans le réacteur d'oxydation s'ajoute l'eau provenant des entrées d'air humide de la cellule vers l'intérieur des boîtes à gants. Or la seconde représente 10 000 fois le volume de la première. Il en résulte deux inconvénients majeurs :

- la production d'une quantité substantielle d'eau tritiée (environ 100 litres par an),
- la forte dilution de la teneur en tritium (concentration dans l'eau de 300 Ci/l, soit 11,1 TBq/l, correspondant à un titre isotopique en tritium de 100 ppm).

Cette eau est entreposée de manière sûre dans des bidons en polyéthylène de 10 litres, eux-mêmes placés en boîtes à gants, ou bien elle est refixée sur de la zéolithe à l'intérieur de conteneurs étanches. Des études sont en cours pour mettre un point un procédé permettant de valoriser cette eau. Celui-ci comportera une phase préliminaire d'élimination des impuretés chimiques (purification), suivie d'une électrolyse de l'eau puis d'une étape de séparation isotopique de l'hydrogène produit.

Les systèmes de détritiation de Valduc sont en constante évolution.

Les réflexions actuelles visent à réduire et éventuellement supprimer les quantités d'eau tritiée produites. La solution envisagée consisterait à augmenter la concentration en tritium dans le flux à traiter en effectuant une étape préliminaire d'enrichissement. Cette séparation entre le tritium gazeux et l'azote de balayage des boîtes à gants peut être réalisée par perméation dans des membranes organiques (par exemple en polyimide). Le tritium ainsi enrichi pourrait alors être piégé directement sur un matériau adapté dit « getter », sans passer par l'étape d'oxydation.

Retour d'expérience sur la gestion des déchets et rejets tritiés

Ph. Guétat, S. Rochefort, JP. Daclin, C. Douche
CEA/DAM, Centre d'études de VALDUC

Summary

In the context of fusion reactor development, it is important to predict waste stream, efficiency of waste treatment and interaction between waste management and environment.

This paper intends to summarize the experience of CEA in this field, gives some global ratios in technical environmental and economical terms, so that it can help for dimensioning or selecting treatment installations for other industrial plant. CEA has a complete management of tritiated waste, including cutting, melting in furnace, vapour decontamination treatment of organic waste and detritiation of glove boxes. Measurements of drums out-gassing are systematically performed. Relations between out-gassing and content are discussed. Ratios HT/HTO are presented. This experience shows that pure tritiated waste can be neutralized and managed with relatively few releases.

Résumé

Dans le contexte du développement des réacteurs à fusion, il est important de prédire les flux de matériaux, l'efficacité des traitements et les interactions entre la gestion des déchets et l'environnement.

Ce document résume l'expérience du CEA dans ce domaine. Il donne des ratios indicatifs en termes économiques et environnementaux, de manière à contribuer au dimensionnement des installations et à la sélection des moyens de traitements pour des installations industrielles à technologie comparable. Le système de traitement mis en place au CEA pour les déchets tritiés est complet. Il englobe pour les métaux la découpe, le tri et la fusion ; la décontamination par traitement à la vapeur sèche des déchets organiques, et la détritiation des boîtes à gants. Les mesures de dégazage des fûts sont systématiquement réalisées. La relation entre dégazage et inventaire est discutée. Les ratios de concentration atmosphérique HT/HTO sont présentés. Ce retour d'expérience montre que les déchets tritiés purs peuvent être neutralisés et gérés avec relativement peu de rejets.

1 | Contexte

Pour ses installations tritium, le CEA Valduc a mis en place une stratégie globale durant les années 1980 [Giroux 92] [Pelletier 92] en vue de limiter les rejets de tritium, de le recycler ainsi que les matériaux décontaminés, et ainsi de réduire les volumes de déchets tritiés.

La première étape (1979-99) a consisté à inclure progressivement les procédés dans des boîtes à gants (seconde barrière) afin de limiter la contamination de l'air et de permettre le contrôle de sa qualité. Il s'agissait en particulier de réduire voire de supprimer toute humidité, de telle sorte qu'une détritiation puisse être intégrée dans la boucle de recyclage d'air du système de ventilation, et ce systématiquement dès lors que les activités mises en œuvre étaient conséquentes.

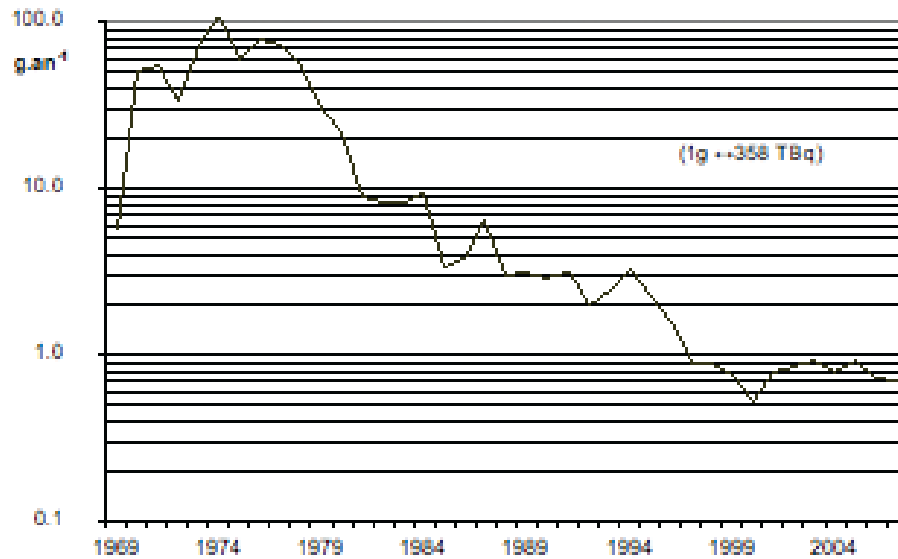
Cette conception présente l'avantage de réduire les rejets issus de l'installation de purification du tritium, mais augmente la production de déchets et les rejets associés. C'est pourquoi cette étape a été complétée par la mise en place d'une stratégie de gestion des déchets, prenant en compte le tri par nature et par niveaux d'activité, en liaison avec les traitements possibles.

En 2000, un bâtiment dédié au traitement des déchets tritiés a été mis en service pour : découper, déchiquter, trier, fondre les déchets métalliques de la première barrière dans un four chauffant jusqu'à 1973°K, et traiter les déchets organiques par vapeur sèche à 373°K. Ce bâtiment comporte également des cellules de démantèlement de boîtes à gants et autres déchets de seconde barrière ainsi que des conteneurs de déchets, étanches aux gaz, pour entreposage avant traitement et des eaux de faible activité (<20 TBq/L) résultant des traitements. Depuis 2008, la « solidification » des eaux tritiées par sorption sur zéolithe dans des conteneurs étanches à l'air permet progressivement d'achever la mise en place de cette filière de traitement.

Une autre installation abrite les déchets de faible et moyenne activité en fûts de 200L, dans trois locaux d'entreposage dédiés, en fonction de leur taux de dégazage. Les seuils utilisés comme critères de tri sont de 1,85 MBq.j⁻¹.fût⁻¹ et de 55 MBq.j⁻¹.fût⁻¹. En pratique, la catégorie de fûts à fort taux de dégazage correspond essentiellement à des déchets anciens qui sont progressivement repris et nécessitent une attention particulière [Batifol 08].

La figure 1 illustre l'intérêt de cette stratégie sur l'évolution des rejets de tritium du centre de Valduc. Les niveaux de rejets sont aujourd'hui stabilisés malgré un volume de déchets stockés sur site en augmentation du fait que les centres de stockage français ne disposent pas de critères d'acceptation réalistes. La loi sur les déchets de 2006 et le décret d'application associé [Loi 2006] [Décret 2008] actent du besoin d'un stockage intermédiaire avant élimination ou recyclage.

Figure 1: Rejets atmosphériques de tritium du site de Valduc.



La figure 2 montre que le traitement est actuellement la principale source des rejets en ce qui concerne les déchets.

Figure 2 : Origines des rejets liés aux déchets en 2007

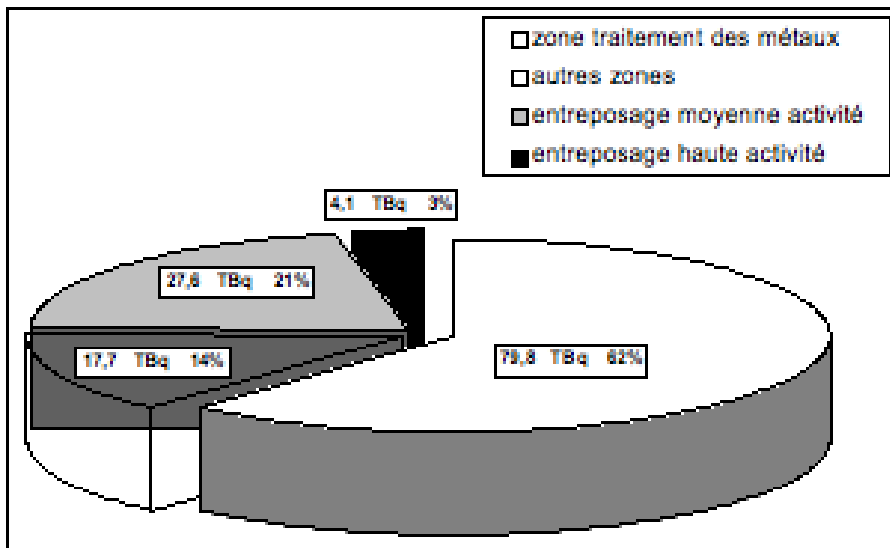
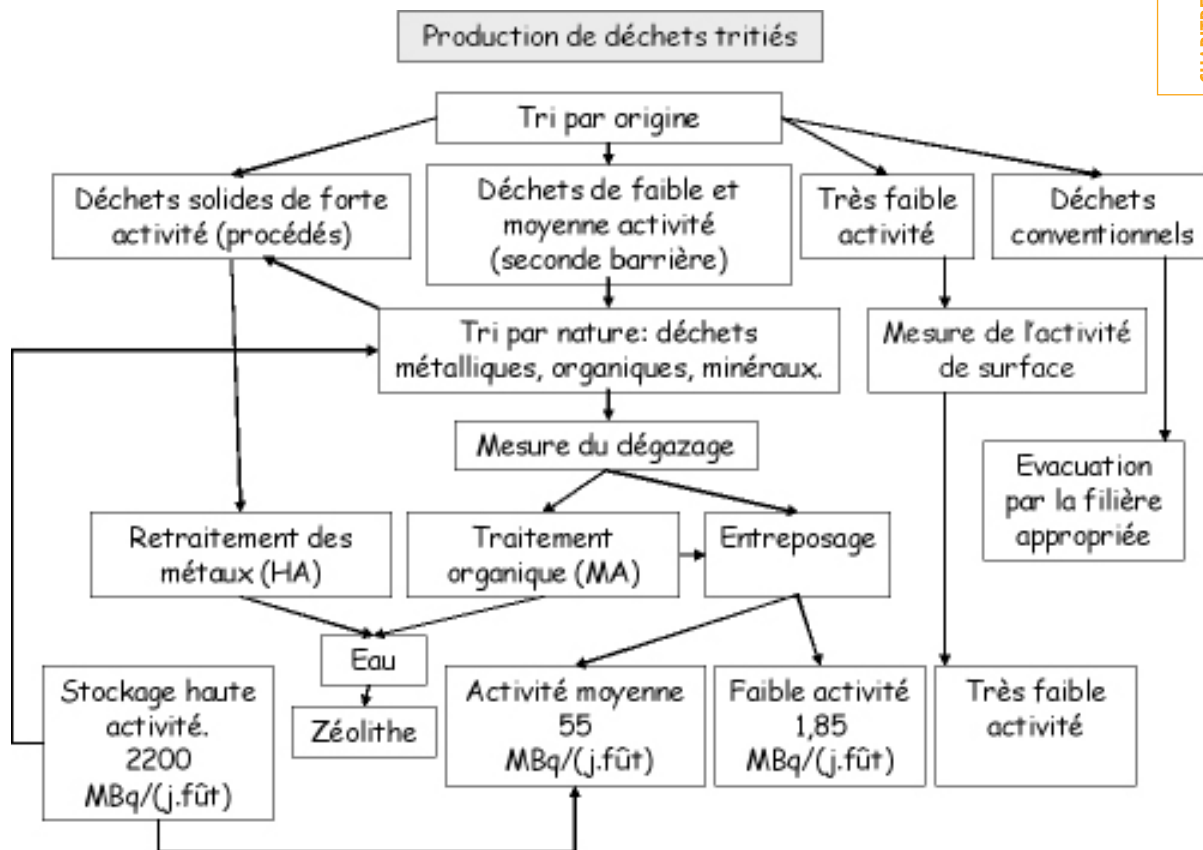


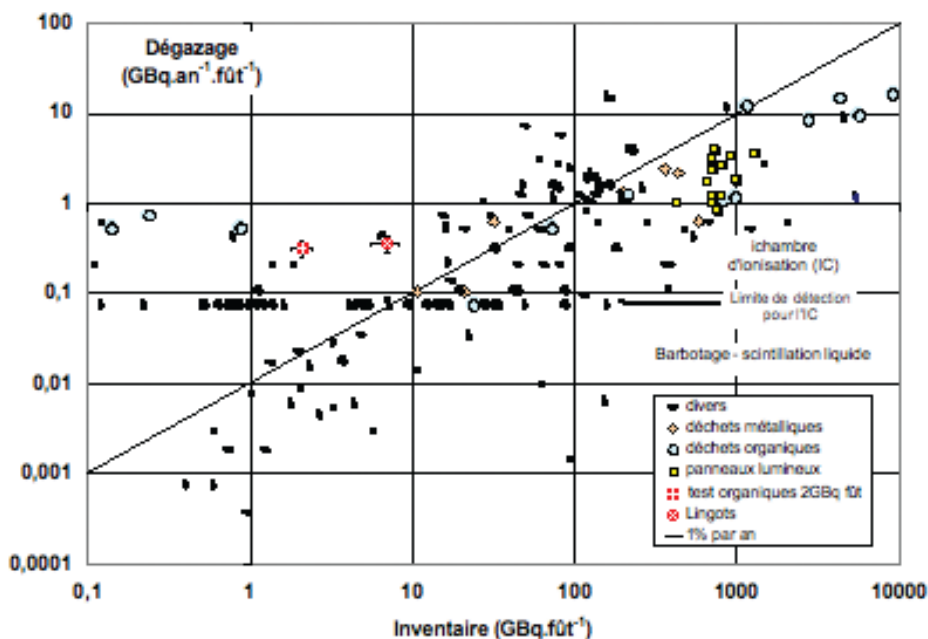
Figure 3 : Rejets atmosphériques de tritium du site de Valduc.



2 | Rejets des bâtiments d'entreposage des fûts de 200 L

Le dégazage des fûts est mesuré au moyen de chambres d'ionisation et l'activité est contrôlée par la mesure d' ^3He par spectrométrie de masse (méthode ^3He) [Demange 02][Ravat 02]. D'autres types de mesures existent et seront mentionnés en tant que de besoin dans les paragraphes suivants, afin de préciser les relations entre dégazage et activités contenues.

Figure 4 : Relation entre dégazage et activité pour les fûts à taux de dégazage intermédiaire.



Ces informations concernent les fûts de l'entreposage à taux de dégazage moyen. La Figure 4 présente l'inventaire des activités, mesurées par la méthode ^3He , associées au taux de dégazage mesurés par deux méthodes différentes en fonction du niveau. Sur cette figure, la nature des déchets est indiquée lorsqu'elle est connue et homogène. Deux tests expérimentaux sont également indiqués : l'un concerne les lingots d'acier inoxydable, l'autre des déchets organiques contaminés à niveau prédéfini. Le taux générique de 10^{-2} an^{-1} semble pertinent si l'on considère une grande quantité de déchets mélangés, mais la variabilité est importante.

Il est intéressant de noter que les plaquettes lumineuses au tritium présentent des taux compris entre 10^{-3} et 10^{-2} an^{-1} . Le taux mesuré pour les matières organiques est de $0,15 \text{ an}^{-1}$, ce qui peut être comparé aux cinq résultats obtenus par Godot [Godot 08] qui sont compris entre 0,1 et $1,4 \text{ an}^{-1}$ avec une moyenne de $0,34 \text{ an}^{-1}$ pour des activités comprises entre 10 et 35 GBq. Pour des activités comprises entre 1 et 10 TBq, le taux semble inférieur à $1\% \text{ an}^{-1}$. On peut supposer un effet dû à la nature des déchets et au vieillissement. Notons que pour un taux de $1\% \text{ an}^{-1}$, 15% de l'activité initiale sont effectivement rejetés en 50 ans environ tandis que pour un taux de 10%, 64% de l'activité initiale sont rejetés en 22 ans.

Par ailleurs, il existe une influence de la température [Guétat 08a] selon une relation en $e^{-6096/T}$, ($R^2=0,96$), où la température ambiante (T) est exprimée en °K. Celle-ci explique les variations saisonnières observées à Valduc et peut conduire en France à des différences d'un facteur 2 ou 3 entre différents sites.

3 | Traitement des déchets métalliques de haute activité

Généralement, les déchets métalliques proviennent du démantèlement des procédés en boîtes à gants et de ce fait, leur activité est élevée. La majeure partie de cette activité est localisée en surface et sans traitement, le dégazage de ces matériaux est important : Torikai et al. [Torikai 05] mentionne des taux de dégazage de l'ordre de $0,7 \text{ an}^{-1}$. Le traitement des déchets métalliques par fusion comprend trois étapes : la première consiste à trier, découper et préparer les charges de métal. La seconde est la fusion proprement dite à une température pouvant atteindre 1973°K . Après mise en route du circuit de refroidissement, le four peut être mis en chauffe et les charges introduites une à une. Le métal est fondu en lingots. La dernière étape, effectuée après refroidissement, correspond au traitement des lingots : sortie du four, nettoyage et mesure du taux de dégazage. Ces opérations sont réalisées dans un système fermé de ventilation passant sur détritiation. En pratique, tout le tritium gaz est transformé en eau tritiée et piégé sur tamis moléculaires. On obtient finalement de l'eau tritiée qui est entreposée en boîte à gants et constitue la principale source de rejet.

En termes de volume, 1 tonne de matériau (2/3 d'acier, 1/3 d'aluminium et 3% d'autres matériaux) correspond à un volume initial de déchets de $0,916 \text{ m}^3$. La préparation et la fusion conduisent à la production de $0,187 \text{ m}^3$ de lingots (soit 17 lingots) et de 16 L d'eau, qui vont désormais être entreposés sur de la zéolithe dans des fûts de 160 L étanches au gaz. La réduction du volume est de 4,5 avec de l'eau sous forme liquide, elle n'est plus que de 2,6 lorsque l'eau est adsorbée sur zéolithe. En termes de radioactivité, l'activité initiale des déchets métalliques est estimée à 170 TBq.t^{-1} . Les lingots contiennent environ $0,1 \text{ TBq.t}^{-1}$, ce qui correspond à une réduction moyenne de l'activité d'environ 1700. L'activité de l'eau produite est d'environ 9 TBq.L^{-1} . D'après une équation donnée par Guétat [Guétat 86] ($F_d = 4.18 A_i^{0.064}$, A_i in Ci.t^{-1}), le facteur de décontamination moyen aurait été évalué à 1100. En fait, l'activité des lingots après décontamination est relativement constante, avec une variation d'un ordre de grandeur, alors que les activités initiales des déchets varient de trois ordres de grandeur. Cette variabilité initiale est liée au temps de résidence du tritium en contact avec le métal, au rapport

surface/masse et à la contamination éventuelle par des poudres d'hydrures tritiés [Scott 05]. Concernant les rejets, le taux de dégazage de l'eau stockée est de $2.10^{-3} \text{ an}^{-1}$, ce qui correspond au traitement de $0,29 \text{ TBq.t}^{-1} \text{ an}^{-1}$ de métal. L'intégration à l'infini conduirait à un rejet total de 6 TBq.t^{-1} et donc à une réduction globale des rejets d'un facteur 15. La quantité totale d'eau stockée et le dégazage correspondant ont augmenté d'année en année et sont actuellement responsables d'environ la moitié des rejets totaux du bâtiment de traitement des déchets. Le stockage sur zéolithe, plus sûr et réversible, devrait permettre de réduire sensiblement cette source de rejet.

Des expériences ont été réalisées afin de comparer les différents types de mesures des lingots. Pour trois lingots d'acier, des prélèvements ont été effectués et mesurés par spectrométrie. Une mesure par méthode ^3He a été également réalisée et le taux de dégazage a été mesuré par barboteur et scintillation liquide. L'activité totale mesurée était de 7 GBq; la méthode ^3He a donné un résultat de 2,1 GBq, et le dégazage a été estimé à 340 MBq.an^{-1} . Ceci indique que la méthode ^3He sous-estime l'activité des lingots mais pas de façon critique. On obtient ainsi un taux de dégazage de $5.10^{-2} \text{ an}^{-1}$. Cette valeur semble élevée puisque la gamme habituelle se situe entre 1 à 10 MBq.an^{-1} par lingot. Il est également intéressant de noter que le dégazage des lingots s'effectue principalement sous forme HTO (70 à 95%).

Le tableau 1 résume les caractéristiques du traitement des déchets métalliques.

Tableau 1 : Caractéristiques du traitement des déchets métalliques (pour 1 tonne)

Volume initial : $0,916 \text{ m}^3$	Volume final : $0,187 \text{ m}^3$ (lingots) / 16 L d'eau
Facteur de réduction du volume : 4,5	Facteur de réduction du volume final (zéolithe) : 2,6
Activité initiale : 170 TBq	Activité finale : $0,1 \text{ TBq}$ (lingots) / 9 TBq/L d'eau
Facteur de décontamination pour les solides : 1700	
Taux de dégazage de l'eau : $2.10^{-3} \text{ an}^{-1}$	
Facteur de réduction totale des rejets : 15	

4 | Traitement des déchets organiques

Le but du traitement des déchets organiques est de réduire le dégazage et les volumes à stocker. La technique employée est la suivante : quatre fûts de déchets organiques sont introduits en boîte à gants, où ils sont triés. Les déchets sont ensuite transférés dans une déchiqueteuse. Les fragments sont alors placés dans des conteneurs puis chargés dans un four. Le traitement consiste à chauffer les déchets à 373°K sous vide dans un flux de vapeur non saturée. Les résidus sont ensuite compactés en un seul fût.

Le bilan annuel montre que le traitement de 1 tonne de déchets organiques conduit à une densité finale de $0,66 \text{ t.m}^{-3}$ dans les fûts et à 28 L d'eau présentant une activité de $2,4 \text{ TBq.L}^{-1}$. L'activité tritium ainsi récupérée est de 68 TBq.t^{-1} . Le dégazage est réduit de 4 à $0,1 \text{ TBq.t}^{-1} \text{ an}^{-1}$, ce qui correspond à une réduction totale du dégazage d'un facteur 40. En considérant que la majeure part de l'activité a été éliminée, le taux de dégazage global des déchets organiques initiaux est estimé à $0,06 \text{ an}^{-1}$. Sans traitement, la moitié de l'activité serait rejetée, soit 34 TBq.t^{-1} , au lieu de 2 TBq.t^{-1} pour le dégazage de l'eau tritiée. Les volumes sont réduits d'un facteur 4. Il convient de remarquer qu'il n'y a pas de corrélation entre la décontamination et l'activité initiale. Le tableau 2 résume les caractéristiques du traitement des déchets organiques.

Tableau 2 : Caractéristiques du traitement des déchets organiques par traitement thermique (pour 1 tonne)

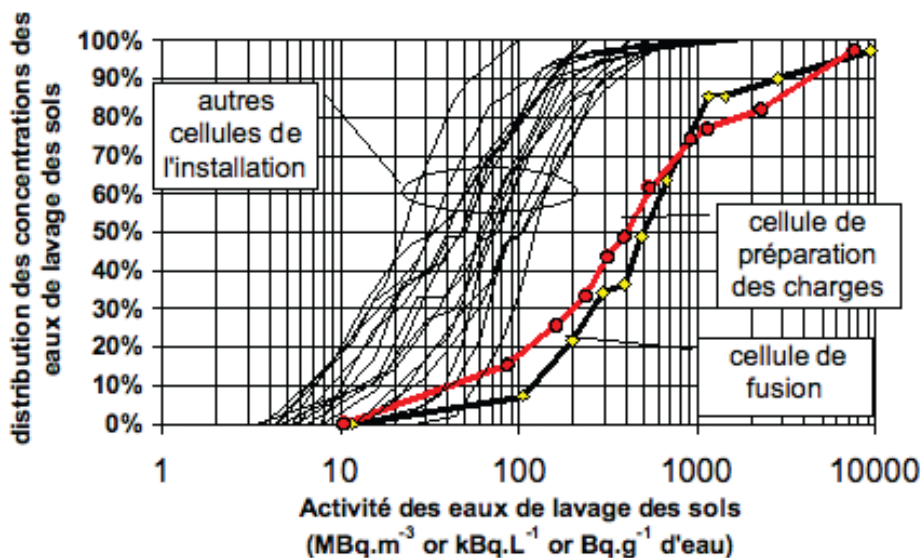
Densité initiale : 0,17	Densité finale : 0,66
Production d'eau : 28 L à 2,4 TBq.L ⁻¹	
Facteur de réduction du volume : 4	
Dégazage initial : 4 TBq.an ⁻¹	Dégazage final : 0,1 TBq.an ⁻¹
Taux de dégazage initial : 0,06 an ⁻¹	Taux de dégazage final : grande variabilité
Facteur de réduction totale des rejets : 17	
Facteur de réduction totale du dégazage : 40	

5 | Autres sources de rejets des installations de traitement des déchets

En dehors du stockage d'eau tritiée déjà mentionné, il existe d'autres sources de rejets. La cellule de démantèlement de grande taille et dans laquelle les opérateurs entrent n'est pas détritée et contribue aux rejets. Le maintien en dépression du système de ventilation-détritiation nécessite d'évacuer périodiquement un peu d'air, ce qui constitue une autre source de rejets. Les tests annuels indiquent que les tamis moléculaires neufs ont une efficacité de l'ordre de 10⁵ pour un rejet court de HT en boîte à gants. Cependant, afin de limiter la production d'eau, le procédé de détritiation ne fonctionne pas de façon permanente et le système de ventilation est alors une source de rejets de faible concentration.

La figure 5 présente la distribution des concentrations des eaux de lavage du sol dans différentes cellules du bâtiment, lesquelles sont lavées pratiquement chaque semaine. On peut remarquer que les deux cellules concernées par le traitement des déchets métalliques sont sensiblement plus tritiées que les autres. Pour ces opérations, il existe en effet des possibilités d'échanges avec l'air extérieur des cellules du fait des transferts de fûts et des chargements du four.

Figure 5 : Activités des eaux de lavage du sol dans différentes cellules du bâtiment de traitement des déchets



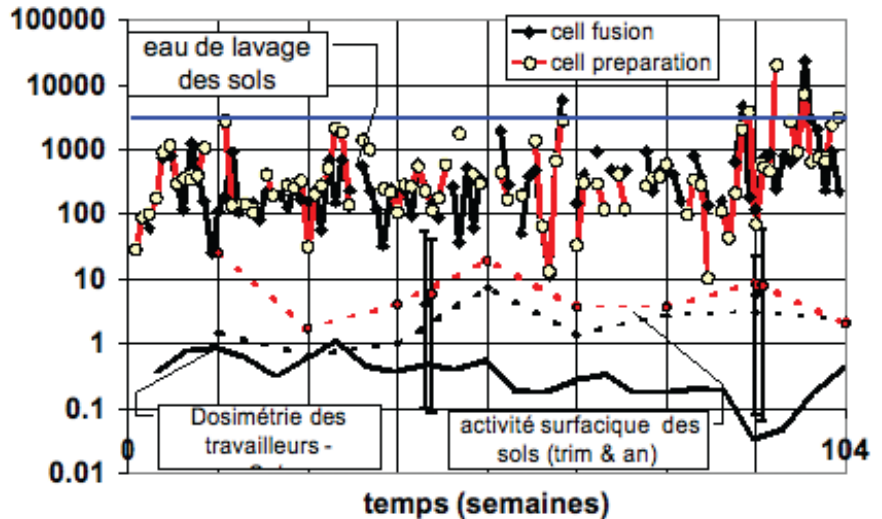
6 | Déchets et zonage de radioprotection

Deux valeurs de référence sont utilisées au CEA pour le zonage des installations tritium.

La première est de 100 Bq.cm⁻² pour les frottis, correspondant aux limites entre les zones contrôlées et surveillées, et entre les zones d'entreposage de déchets nucléaires et les zones d'entreposage de déchets conventionnels.

Cette valeur est complétée par un niveau de référence pour les eaux de lavage des sols, de 3000 Bq.g⁻¹.

Figure 6 : Activités des eaux de lavage du sol, mesures de surface et dosimétrie des travailleurs



La figure 6 montre que ces limites pratiques permettent de garantir l'absence d'accumulation de tritium sur les surfaces des cellules et permettent de maintenir l'exposition des travailleurs, à temps plein, en dessous de 1 mSv.an⁻¹, valeur qui correspond à la limite d'exposition pour des personnes du public.

Malgré des fluctuations qui peuvent atteindre un ordre de grandeur, la valeur de référence pour le lavage permet de maintenir une activité de surface à une valeur moyenne en tritium labile de 10 Bq.cm⁻² sans excéder 100 Bq.cm⁻² (mesures par frottis). Ceci est cohérent et correspond approximativement à une valeur moyenne de 100 Bq.cm⁻² en tritium total et à la valeur de 100 Bq.g⁻¹ recommandé par l'AIEA [IAEA] pour les seuils de libération des matériaux. Elle correspond aussi à une exposition pour les travailleurs inférieure à 1 mSv.an⁻¹ cohérente avec les règles de zonage de radioprotection.

Enfin il convient de remarquer que la décroissance après un dépôt est si rapide que la diffusion dans le sol est nécessairement limitée. L'activité moyenne des eaux de lavage des sols sur les 2 ans est de 800 Bq.g⁻¹.

L'activité moyenne dans l'air des cellules de travail est de l'ordre de 10^4 Bq.m^{-3} . Ceci correspond à un rejet d'environ 5 à 10 TBq qui participe au rejet minimal de l'installation, difficile à réduire du fait qu'il provient d'un ensemble de petits rejets dans de nombreuses cellules de traitement et de maintenance. Il est intéressant de remarquer que les estimations des activités de l'air, du sol, des eaux et des rejets sont cohérentes et conduisent à une vitesse de dépôt de 10^{-5} m.s^{-1} de l'air au sol. Cette valeur est relativement faible comparativement aux vitesses de dépôt mesurées dans l'environnement, généralement de l'ordre de 100 fois plus fortes. L'une des explications de cette valeur faible pourrait être la faible humidité relative dans le bâtiment.

Concernant la forme chimique du tritium, il apparaît clairement que le pourcentage d'HTO se situe entre 80 et 95%, à l'exception de quelques cellules très spécifiques ne traitant que du gaz. Ceci est principalement à relier au fait que la détritiation produit de l'eau tritiée. D'autre part, un autre aspect de la détritiation est d'oxyder et d'éliminer toute molécule organique éventuelle sous forme de CO_2 .

La question de la forme chimique du tritium pourrait devenir un point intéressant dans le futur du fait que l'impact environnemental et radiologique de HT est environ 10 à 100 fois plus faible que celui de HTO [Guétat 08b][Galeriu 08]. La rétention de la seule forme HTO, (sans transformation de HT en HTO), constitue une voie de progrès possible du point de vue de l'impact environnemental. Néanmoins, ceci nécessite en pratique que les méthodes et les procédés utilisés garantissent que le tritium sous forme HTO est capté à au moins 99%.

7 | Aspects économiques et écologiques

Le tableau 3 présente une estimation des coûts des déchets, qui inclut la production, le traitement et l'entreposage.

Tableau 3 : Aspects économiques et écologiques relatifs aux déchets.

	Coût k€·t ⁻¹	Rejets évités TBq·t ⁻¹
Fusion des métaux (procédés)	75	90
Traitement déchets organiques	25	32
Entreposage déchets organiques	15	< 0,05 (50% par décroissance)
Déchets métalliques de 2 ^e barrière et entreposage des déchets de faible activité (20 ans)	14	< 0,05 (50% par décroissance)
Evacuation des déchets de très faible activité vers l'ANDRA	9	<0.001

8 | Conclusions

Deux technologies de traitement des déchets ont été mises en place au CEA Valduc, en prolongement d'une utilisation importante de systèmes de détritiation dans les installations tritium. Cette stratégie a permis de réduire considérablement les rejets malgré l'entreposage des déchets sur le site. Ceci sera progressivement dans les années à venir complété par le confinement des eaux tritiées sur zéolithe dans des fûts étanches au gaz.

L'impact des déchets de moyenne et faible activité est faible et ne constitue donc pas une priorité pour les actions futures. Les déchets constituent une source de rejet qui peut s'amplifier avec le temps si des traitements appropriés ne sont pas mis en place. Néanmoins, ce retour d'expérience montre que les déchets tritiés purs peuvent être neutralisés et gérés avec relativement peu de rejets lorsqu'une stratégie complète est mise en œuvre.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[Batifol 08] G. Batifol, C. Sejourmant, C. Douche - Tritium release reduction and radiolysis gas formation - TRITIUM 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester" - Fusion Science and Technology.

[Décret 2008] Décret n°2008-357 du 16 avril 2008 pris en application de l'article L542-1-2 du code de l'environnement et fixant les prescriptions relatives au plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs.

[Demange 02] D. Demange, M. Grivet, H. Pialot, A. Chambaudet - Indirect Tritium Determination by an Original ³He Ingrowth Method Using a Standard Helium Leak Detector Mass Spectrometer Anal. Chem. 2002, 74

[Galeriu 08] Galeriu D., Davis Ph., Raskob W., Melintescu A. (2008) - Tritium radioecology and dosimetry – Today and tomorrow - TRITIUM 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester" - Fusion Science and Technology Vol.54 n°1; 237-242.

[Giroux 92] P. Giroux, Th. Pelletier, M. Maj - Strategy for management of solid tritiated wastes Fusion technology, vol 1, mars 1992

[Godot 08] A. Godot, C. Lepeyre, J.C. Hubinois, A. Arseguel, J.P. Dacclin, C. Douche - A méthode to quantify tritium inside waste drums : ³He ingrowth method - TRITIUM 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester" - Fusion Science and Technology Vol.54 n°1

[Pelletier 92] Th. Pelletier, P. Giroux, M. Maj – Reprocessing of tritiated organic products

[Guétat 86] Ph. Guétat - Fusion wastes: technical and radiological aspects - Consequences for NET and FCTR waste management. IAEA Technical Committee meeting on fusion reactor safety, 3-7 Nov 1986, CULHAM.

[Guétat 08a], Ph. Guétat C. Douche, JC Hubinois - Tritium and the environment: sources, Measurement and transfer in radiation protection n° 152 - EU Scientific Seminar 2007.

[Guétat 08b] Guétat Ph. Patryl L. (2008) - «Environmental and Radiological Impact of Accidental Tritium Release»- Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", Fusion Science and Technology Vol.54 n°1 ; 273-276.

[IAEA 2004] IAEA Safety standards series - Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance SAFETY GUIDE No. RS-G¹.

[Loi 2006] Loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs – J.O. 149 du 29 juin 2006

[Ravat 02] B. Ravat, D. Demange, H. Pialot, M. Grivet -Model and simulation of gaseous helium-3 exchanges with the atmosphere from a tritiated waste drum - Nuclear Engineering and Design 216 (2002) 153–164

[Scott 05] R. Scott Willms - Simplified estimation of tritium inventory in stainless steel Fusion Science and Technology vol. 48 2005

[Torikai 05] Y. Torikai, R. Penzhorn, M. Matsuyama K. Watanabe - Chronic release of tritium from SS316 at ambient temperature: Correlation between depth profile and tritium liberation - Fusion science and technology vol 48 2005

Entreposage des déchets tritiés sans exutoire de filière

Synthèse du Dossier d'orientation

CEA

Synthèse du dossier d'orientation

Dans le cadre de ses activités de recherche et développement, notamment pour ses applications militaires, le CEA produit des déchets contenant du tritium qui sont aujourd'hui sans exutoire définitif ; ils sont actuellement entreposés après traitement et conditionnement sur les sites de Valduc et de Marcoule. Par ailleurs, des industriels et des laboratoires de recherche médicale et pharmaceutique ont utilisé et utilisent encore du tritium pour différentes applications qui ont généré des déchets tritiés, dont une quantité limitée est également sans exutoire. Enfin, l'installation ITER générera également des déchets tritiés à partir 2020.

Les sites actuels de stockage de surface de l'ANDRA ne sont pas conçus pour accueillir ces déchets.

Face à cette absence d'exutoire, la loi du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs, prévoit dans le cadre de la mise en place du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR) « la mise au point pour 2008 de solutions d'entreposage des déchets contenant du tritium permettant la réduction de leur radioactivité avant leur stockage en surface ou à faible profondeur ».

Le **décret du 16 avril 2008** fixant les prescriptions relatives au PNGMDR précise les données à fournir et désigne le CEA comme pilote des études.

«... le Commissariat à l'énergie atomique (CEA) remet aux ministres chargés de l'énergie et de l'environnement, au plus tard le 31 décembre 2008, une étude sur les solutions d'entreposage de déchets contaminés par du tritium déjà produits et à venir et non susceptibles d'être stockés directement dans les centres de stockage de l'ANDRA.

Cette étude précise le délai dans lequel ces déchets pourront être pris en charge dans les centres de stockage de l'ANDRA. Le Commissariat à l'énergie ato-

mique veille en particulier à prendre en compte les contraintes, notamment en termes de sûreté et de transport afin de justifier le nombre d'entreposages de décroissance nécessaires pour ce type de déchets. Cette étude présente les orientations de sûreté et précise les dispositions de conception, de réalisation et d'exploitation de l'entreposage qui permettent de limiter autant que possible la migration de tritium dans l'environnement.

Le Commissariat à l'énergie atomique propose un échéancier de mise en oeuvre des solutions d'entreposage envisagées et remet une première estimation de leur coût. »

Un **inventaire** exhaustif des déchets actuellement en stock ou à produire jusqu'en 2060 a été réalisé. Les déchets pris en compte dans ce dossier proviennent :

- pour l'essentiel, des activités militaires du CEA : déchets d'exploitation et futurs déchets de démantèlement ;
- des activités civiles du CEA : déchets issus des recherches liées aux sciences du vivant et issus des réacteurs de recherche
- du nucléaire diffus : déchets produits par les « petits producteurs » et la défense nationale, tels que décrit dans l'inventaire de l'ANDRA

Les industriels de l'électronucléaire (EDF et AREVA), ne disposent pas, à ce jour, de déchets tritiés sans exutoire.

L'installation ITER deviendra à partir de 2020 le premier contributeur à l'inventaire, d'abord dans une phase d'exploitation puis, à partir de 2050, en phase de démantèlement.

Seuls les déchets solides sont pris en compte. Les déchets liquides et gazeux, dont les quantités sont très faibles, seront traités et stabilisés avant de rejoindre les entreposages.

Producteurs	Etat des stocks		Production cumulée prévisionnelle jusqu'à 2060	
	Volume (m³)	Inventaire (TBq)	Volume (m³)	Inventaire (TBq)
CEA applications militaires	3500	4200	12 000	1000
CEA applications civiles	30	2	276	20
Nucléaire Diffus	50	220	120	20
ITER	0	0	17 000	33 000

Tableau 1 : Inventaire des déchets à prendre en compte

La solution proposée repose sur un entreposage de décroissance dans des installations à construire à proximité des principaux sites de production (sites de Valduc, Marcoule et Cadarache) après un traitement et un conditionnement des déchets par les producteurs.

Pour garantir un impact aussi faible que raisonnablement possible des installations d'entreposage sur l'environnement, compte tenu des caractéristiques du tritium et de sa mobilité, les déchets les plus dégazants devront être soit détritiiés, soit conditionnés dans des conteneurs étanches aux gaz. Le rejet résiduel inéluctable, envisagé pour l'ensemble des installations d'entreposage, représentera une faible fraction des rejets tritiés en France (quelques centaines de TBq/an soit moins de 1 g/an) et son **impact** sur l'environnement et sur l'homme se situera autour de un microsievert par an, à comparer à la limite réglementaire pour le public, qui est de un millisievert par an.

Le principe d'**entreposer les déchets au plus près des principaux lieux de production** ou de traitement a été retenu. Il permet de limiter le transport de grandes quantités de déchets, évitant ainsi des rotations entre un lieu de production et un lieu d'entreposage. Quant aux déchets solides issus du nucléaire diffus ou des activités civiles du CEA, produits en faible quantité, ils seront regroupés transitoirement sur le site de Valduc ; en effet, les volumes et les inventaires radiologiques mis en oeuvre restent faibles et n'augmentent pas significativement l'impact environnemental du site.

Une durée d'**entreposage d'une cinquantaine d'années** sera nécessaire pour chacun des colis. Cette durée permet d'attendre l'ouverture de futurs centres de stockages de l'ANDRA qui prendront en compte, dans leur dimensionnement, les caractéristiques des déchets tritiés en sortie d'entreposage. En outre, pour la conception des colis, des solutions techniques industrielles éprouvées existent pour des durées équivalentes et sont connues des autorités de sûreté. Enfin, cette durée permet de

diminuer l'inventaire en tritium contenu dans les déchets d'un facteur 16 environ du fait de la décroissance radioactive naturelle. Quant aux installations elles-mêmes, leur durée de vie pourra être supérieure à 50 ans en fonction de leur acceptabilité réglementaire.

Pour proposer des solutions adaptées à tous les types de déchets inventoriés, ces **déchets** ont été **distribués en six catégories**. Ceux qui contiennent exclusivement du tritium, se répartissent en déchets très faiblement actifs, déchets peu dégazants et dégazants. Les déchets tritiés mixtes, c'est-à-dire associés à d'autres radioéléments, comprennent les déchets uraniés tritiés, les déchets irradiants à vie courte et ceux à vie longue. Compte tenu de cette diversité, une conception modulaire des installations est nécessaire pour s'ajuster aux risques inhérents à chacune de ces catégories.

En ce qui concerne le conditionnement des déchets, leur conception s'appuie sur la connaissance des colis existants, afin de garantir leur durabilité sur une cinquantaine d'années.

S'agissant des entrepôts, le niveau de **dégazage** du tritium est un **critère dimensionnant** vis-à-vis de la protection des travailleurs et du public. Elle implique des ventilations adaptées au risque, qui vont de la ventilation naturelle passive à la ventilation forcée filtrée. Pour les déchets irradiants tritiés, la conception des installations est principalement dictée par le risque d'exposition externe des travailleurs et du public.

Le tableau 2 résume, pour chaque catégorie de déchets, les grandes caractéristiques des différents modules, dont les coûts présentés sont au stade de l'esquisse.

Cet ensemble de solutions permettra aux producteurs de construire, au plus près du lieu de production, les installations en type et en nombre dont ils ont besoin, avant stockage définitif.

Tableau 2 : Caractéristiques des modules par catégorie de déchets

Type de déchet tritié	Type d'entrepôt	Volume déchet par module	Nb de modules	Coût d'un module	Echéancier
Tritiés de très faible activité	Bâtiment en bardage simple non dimensionné au séisme, ventilation naturelle, ICPE	1300 m³	3	1,6 M€	2012 : 1er module pour besoin Valduc 2025 : 2ème module pour besoin ITER 2040 : 3ème module pour besoin Valduc
Tritiés purs peu dégazants	Bâtiment en bardage simple non dimensionné au séisme, ventilation naturelle, INB	3000 m³	3	3,7 M€	2013 à 2050 : 3 modules pour besoin Valduc
Tritiés purs dégazants	Bâtiment en bardage simple, dimensionné au séisme, ventilation forcée, INB	1400 m³	2	4 M€	2025 : 1 module pour besoin Valduc 2050 : 1 module pour besoin Iter
Uraniés tritiés	Bâtiment dimensionné au séisme, ventilation forcée filtrée, INB	200 m³	1	2 M€	2015 : 1 module pour besoin Valduc
Irradiants vie courte en colis bétonnés	Bâtiment béton fermé confinant, dimensionné au séisme, ventilation forcée, INB	6000 m³	3	16 M€	2015 : 1 module pour besoin Marcoule 2048 : 2 modules pour besoin ITER
Irradiants vie longue	Bâtiment avec alvéoles cylindriques parasismiques enterrées, confinement statique ventilation nucléaire, INB	900 m³	3	35 M€	2050 : 3 modules pour besoin ITER

Le stockage de déchets radioactifs contenant du tritium : impact des rejets sur l'environnement

Yannick Arimone, Sophie Dinant, Alain André,
Laurence Legrand, Alain Delaplanche,
Jean-Pierre Vervialle, Philippe Chino - ANDRA

L'ANDRA bénéficie d'un retour d'expérience en termes de stockage des déchets contenant du tritium et de leur impact environnemental, et ce sur deux centres de stockage de déchets radioactifs, chacun dans une phase de vie différente : le Centre de stockage de la Manche, en phase de surveillance, et le centre de stockage FAMA de l'Aube, en phase d'exploitation. Le présent article synthétise les points saillants de ce retour d'expérience.

1 | Le centre de stockage de la Manche

1|1 | Présentation

Le centre de la Manche (CSM) est historiquement le premier centre français de stockage de déchets radioactifs. Sa création a été autorisée par décret en date du 19 juin 1969. Son exploitation s'est terminée fin 1994. Le volume de déchets stockés est estimé à environ 530 000 m³.

Le CSM est situé à l'extrémité Nord-Ouest de la presqu'île du Cotentin, dans la presqu'île de la Hague, à une vingtaine de kilomètres de Cherbourg. Cette installation a une superficie de 14 ha et est localisée en bordure Sud de la commune de Digulleville, dans le canton de Beaumont-Hague, dans le département de la Manche. Il est implanté à l'Est du site AREVA NC avec lequel il possède une clôture mitoyenne.

Le passage en phase de surveillance du centre de stockage a été autorisé par décret en date du 10 janvier 2003. La poursuite des rejets du centre a été autorisée par l'arrêté d'autorisation de rejets du 10 janvier 2003. Le CSM est un centre de déchets radioactifs de faible à moyenne activité contenant en majorité des radionucléides à vie courte (période inférieure ou égale à 30 ans).

1|2 | Inventaire radiologique du Tritium

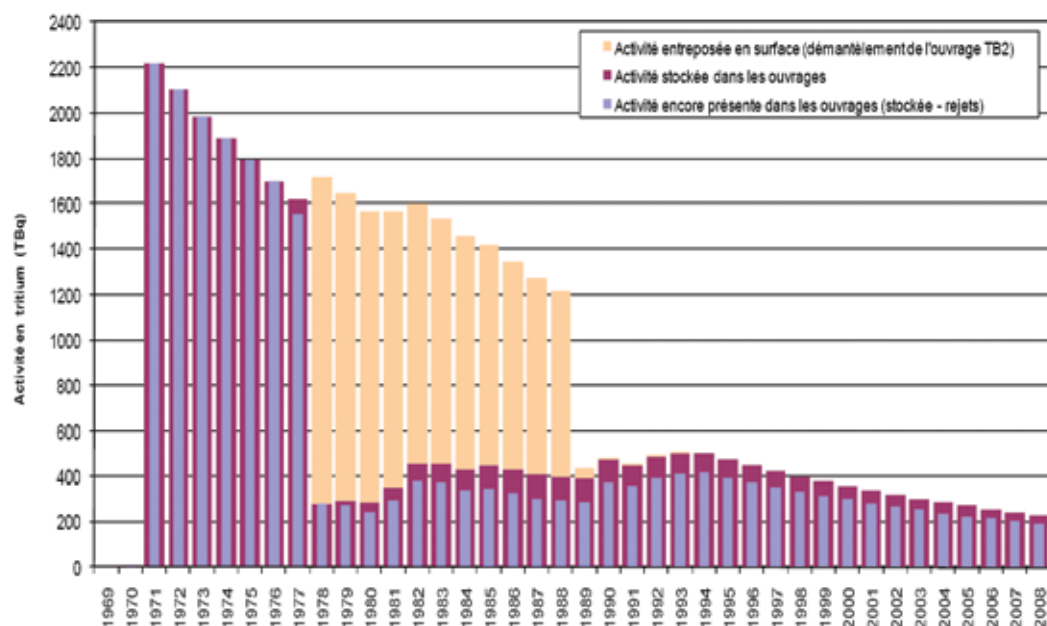
L'inventaire en tritium stocké sur le Centre de la Manche a été actualisé en 1994. Cet inventaire a fait l'objet en 2003, d'un examen critique afin d'établir un historique de l'activité présente sur le centre. Il est constitué de deux parties :

- un bilan du tritium relatif à l'ouvrage TB2, tranchée bétonnée n°2 située à l'est du site, qui constitue à lui seul près de la moitié de l'activité tritium encore présente sur le Centre,
- un bilan du tritium contenu dans les colis. Il est basé sur les déclarations des producteurs ainsi que, pour certains colis particuliers et notamment les plus anciens, d'une réévaluation par l'Andra.

L'évolution annuelle de l'activité tritium présente sur le Centre (Figure 1) a été déterminée à partir des données suivantes :

- l'inventaire révisé de l'ouvrage TB2 suite à la reprise des déchets : 2 200 TBq en juillet 1971 et 190 TBq en février 1978,
- l'inventaire stocké, en comptabilisant chaque ouvrage à partir de son année de fermeture. La décroissance radioactive est alors appliquée à compter de cette date,
- l'activité tritium présente en entreposage sur le Centre suite à la reprise des déchets de l'ouvrage TB2. Elle représente 85 à 65 % de l'activité présente sur le Centre entre 1978 et 1989. Ces colis ont été entreposés sur le centre jusqu'en 1990, débarrassés du tritium par lavage et restockés sur le CSM en 1992.
- des bilans annuels des rejets et relâchements de la nappe phréatique sous jacente au Centre et qui permettent d'établir une estimation de l'activité tritium effectivement présente dans les ouvrages de stockage du Centre à ce jour.

Figure 1: Evolution de l'activité tritium sur le centre de stockage de la Manche avec prise en compte des rejets



La figure 1 montre que les activités estimées à partir des rejets sont cohérentes avec les activités déduites de l'inventaire.

1|3| Surveillance radiologique du centre et de son environnement

Le plan réglementaire de surveillance du Centre, intègre des mesures des activités en tritium dans les réseaux du Centre, dans la nappe phréatique sous jacente ainsi que dans les ruisseaux en aval hydraulique du Centre.

1|3|1| Activité du tritium dans la nappe

L'évolution de la moyenne des activités volumiques annuelles moyennes des piézomètres est présentée dans la Figure 2.

Figure 2: Evolution de l'activité moyenne tritium dans les piézomètres au droit du centre depuis 1996



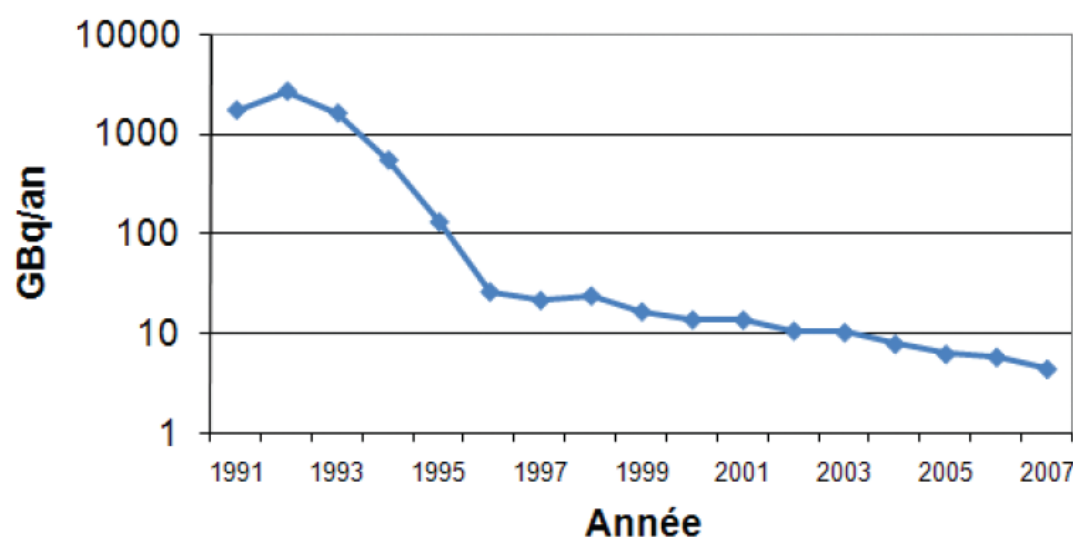
On note que la pose de la couverture, achevée en 1997, a induit une baisse globale de l'activité volumique en tritium, à un rythme supérieur à celui de la seule décroissance radioactive de ce radionucléide entre 1997 et 1998. Depuis 2002, celle-ci semble globalement suivre une tendance similaire à la décroissance radioactive. Par ailleurs, du fait des forts contrastes des activités mesurées l'évolution moyenne est surtout caractéristique de l'évolution des piézomètres les plus marqués.

1|3|2| Les rejets en tritium

Le BDS (bac du séparatif) est l'exutoire des effluents à risque, en provenance des différents réseaux du Centre. Ces effluents sont alors rejetés en mer via l'émissaire d'AREVA NC (émissaire marin du raz Blanchard) et ce en respect des autorisations de rejets du centre.

La mise en place de la couverture entre 1991 à 1997 a permis de réduire significativement les rejets dans l'environnement (Figure 3).

Figure 3: Activité tritium rejetée au BDS



La baisse régulière des relâchements du tritium à partir de 1999 indépendamment des variations de volumes atteste des niveaux de plus en plus faibles des réseaux contribuant à l'apport en tritium au Bac du Séparatif (BDS) par lequel transitent les effluents à risque qui sont envoyés à AREVA NC pour traitement. L'augmentation en 1997 et 1998 résulte des travaux de nettoyage effectués en galerie du RSGE produisant un relâchement tritium.

Depuis 1997, les relâchements en tritium calculés à l'exutoire des effluents à risques respectent les limites annuelles définies dans l'arrêté d'autorisation de rejet du 10 janvier 2003 pour les eaux du BDS (125 GBq en tritium).

1|3|3| Le tritium dans les ruisseaux

Le Centre de stockage de la Manche (CSM) se situe sur trois bassins versants et le réseau hydrographique concerne trois ruisseaux situés à proximité (Figure 4). Il s'agit d'Ouest en Est des ruisseaux de la Sainte-Hélène, du Grand Bel et des Roteurs. Ils ont un cours dirigé vers le Nord et aboutissent en mer en moins de 4 kilomètres.

On retrouve donc d'Ouest en Est :

- le ruisseau de la Sainte-Hélène, qui prenait autrefois sa source à l'intérieur de la propriété d'AREVA NC. Aujourd'hui, après contrôles, sa source est évacuée par le déversoir du bassin tampon (point GPNE: Gravitaire pluvial Nord-Est) et le ruisseau atteint la mer à l'anse Saint-Martin, après un parcours d'environ 3,2 km ;
- le ruisseau du Grand Bel, qui prend sa source au Nord du CSM au Hameau-Es-Clerges et qui aboutit au ruisseau de la Sainte-Hélène, après un parcours de 1,7 km, au lieu-dit «l'Etang-Paysan», près du hameau de la Fosse ;
- le ruisseau des Roteures, qui naît à l'Est du CSM et rejoint le ruisseau La Vallée après un parcours d'environ 1 km. La Vallée se jette dans la mer au port du Hable à Omonville-La-Rogue, à 2 km en aval.

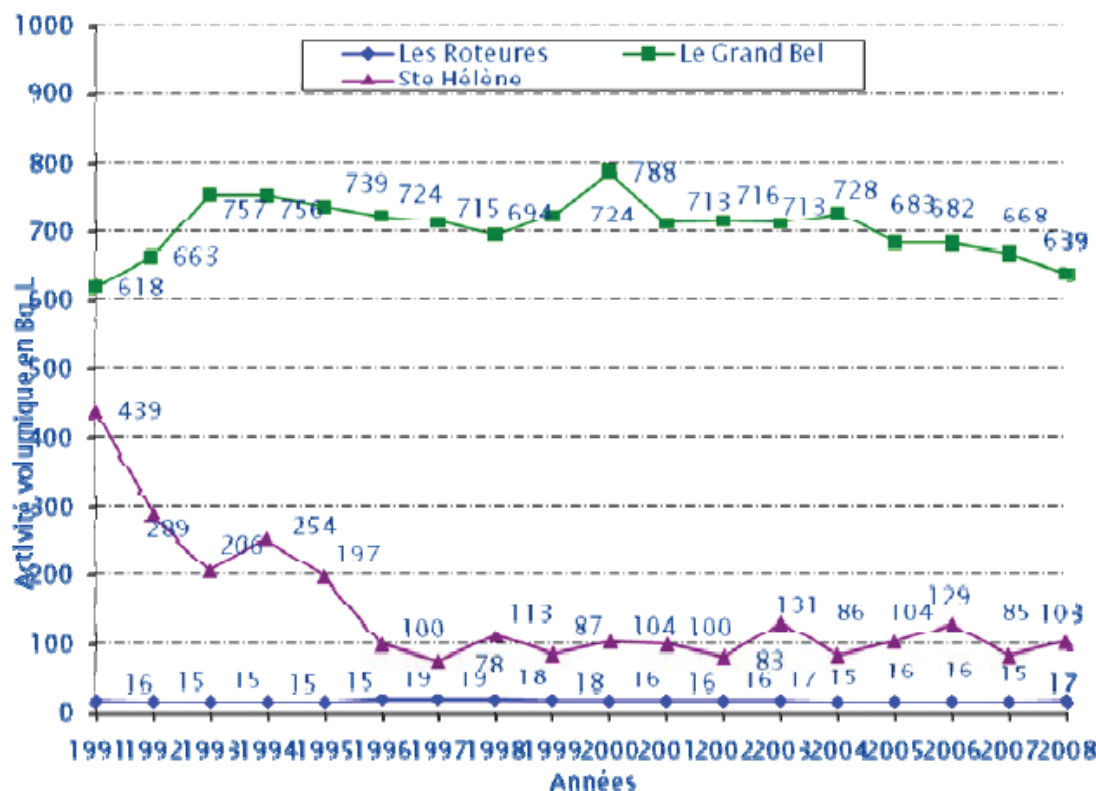
Figure 4 : Localisation des ruisseaux autour du CSM



Figure 5 : Localisation des points de prélèvements des ruisseaux



Figure 6 : Activité volumique du tritium dans les ruisseaux autour du CSM



1|3|3|1| Le ruisseau de la Sainte-Hélène

Le point de contrôle R6 est localisé en amont du Pont-Durand (Figure 5). Les eaux du ruisseau ne présentent pas d'activité particulière en alpha et bêta global. Les activités en tritium fluctuent autour d'un niveau moyen annuel de 100 Bq/L au point R6 (Figure 6). Les évolutions des activités tritium en ce point sont essentiellement dues aux modalités de gestion des eaux par AREVA NC Etablissement de la Hague, et sont cohérentes avec les moyennes mensuelles mesurées au point GNPE (point de rejet des eaux AREVA et ANDRA dans le ruisseau de la Sainte-Hélène, de l'ordre de 91 Bq/L situé à la naissance du ruisseau).

Depuis 1989, des dispositions techniques ont été prises par AREVA NC dans le but de diminuer l'activité volumique tritium des eaux de Sainte-Hélène, notamment en détournant les eaux de drainage des différents bassins vers le réseau GR (Gravitaire à risque) ; ces eaux étant marquées par les eaux souterraines.

1|3|3|2| Le ruisseau du Grand Bel

La surveillance du Grand Bel est effectuée à sa source au point R3 jusqu'en 2001 et à la sortie du hameau Es Clerges depuis (Figure 5).

Les eaux du ruisseau ne présentent pas d'activité particulière en alpha et bêta global. La plupart des résultats de mesure est inférieure ou proche de la limite de détection. Par contre, les eaux du Grand Bel sont marquées en tritium (Figure 6). Ce marquage détecté pour la première fois fin 1981, augmente jusqu'en 1993 ; depuis 1997, l'activité volumique moyenne du Grand Bel se maintient aux alentours de 700 Bq/L avec un maximum à 800 Bq/L. La fuite de tritium dans les terrains sous l'ouvrage TB2, identifiée lors de l'incident de 1976, est à l'origine de la contamination en tritium de la nappe. Le suivi des teneurs en tritium des eaux souterraines, réalisé depuis 1977, a en effet permis de constater la contamination de l'aquifère au droit du Centre puis de suivre l'extension du panache de tritium dans la nappe en direction notamment du Grand Bel. L'analyse de la chronique des teneurs en tritium montre que la teneur en tritium ne s'est plus inscrite en forte hausse au point R3 à compter de l'année 1993, c'est-à-dire après la pose de la couverture sur la partie Nord du site.

Le décalage entre l'évolution des activités relâchées dans les réseaux de collecte du stockage et l'évolution du marquage dans la nappe semble imputable aux terrains naturels situés entre la base des ouvrages et la surface de la nappe qui constituent la zone non saturée (ZNS). Et c'est justement dans la partie Nord du CSM, en amont hydraulique du point R3, que les épaisseurs de ZNS sont les plus importantes. Même s'il existe des possibilités de circulation rapide au travers de ces matériaux, l'essentiel des transferts de tritium est lent, ce qui génère un décalage de plusieurs années entre l'entrée du tritium dans ces terrains et son arrivée effective dans la nappe. Le décalage est d'autant plus important que les flux d'eau sont faibles. Depuis la pose de la couverture, la progression du tritium libéré en phase d'exploitation dans ces terrains peut continuer sous l'effet de deux mécanismes : le ressuyage gravitaire des eaux tritiées contenues dans les terrains et la diffusion du tritium sous forme gazeuse.

Le ralentissement, depuis la pose de la couverture, des transferts dans la zone non saturée du tritium libéré pendant la phase d'exploitation masque donc, au niveau de la nappe, l'effet de réduction des relâchements constaté depuis plusieurs années au niveau des ouvrages. La stabilité apparente des flux en tritium parvenant à la nappe peut alors être expliquée par la persistance d'une progression lente de la contamination tritium au travers de la zone non saturée et son atténuation par la décroissance radioactive, les deux phénomènes se compensant.

Néanmoins, si la période 1993-1998 voit le marquage tritium décroître, cette décroissance est faible et est inférieure à ce qu'on pouvait attendre de la seule décroissance radioactive du tritium. La pose de la couverture a eu un effet immédiat au niveau du stockage, avec la baisse des volumes d'eau et des activités totales collectés annuellement au point BRS0. Cette réduction des infiltrations d'eau au travers du stockage correspond chronologiquement au changement de tendance observé en 1993 au point R3. Sur la période 1993-2001, les teneurs les plus faibles sont obtenues pendant la période des hautes eaux de la nappe, qui correspond également à la réalimentation de nappe par l'eau de pluie, notamment à l'aval du Centre. Cette recharge induit une dilution saisonnière : la valeur moyenne annuelle peut donc fluctuer en fonction de la durée et de l'intensité de la période de recharge de la nappe. La teneur moyenne annuelle en tritium des eaux du Grand Bel au point R3 est un indicateur à analyser sur une durée pluriannuelle et dont on peut dire qu'il est sensible aux conditions locales, à la durée et à l'amplitude des fluctuations climatiques saisonnières et interannuelles.

L'incertitude majeure réside probablement dans la dynamique de relâchement du tritium par le Centre. Seule la surveillance du point R3 et des piézomètres plus proches du Centre permettra d'expliquer, dans la durée, si la tendance à la baisse constatée sur R3 depuis 2005 après 4 années de stabilité se poursuivra.

1|3|3|3| Le ruisseau des Roteures

Les niveaux de la radioactivité des eaux de ce ruisseau au point R1 (Figure 6) sont constants pour tous les émetteurs α , β , et le tritium et correspondent à l'environnement naturel du Centre (les mesures sont inférieures ou proches des seuils de détection). Les mesures réalisées sur le ruisseau des Roteures, au point R1, confirment que ce ruisseau est hors influence hydraulique du CSM en amont de ce point.

Néanmoins, le marquage de la nappe issu de la zone Nord-Est du Centre n'est pas intégralement capté par le ruisseau du Grand Bel. Une partie est vraisemblablement drainée par le cours aval du Ruisseau des Roteures, comme l'indique le marquage du piézomètre P0167 situé sur la ligne de crête entre les vallons du Grand Bel et des Roteures (Figure 7).

Il en résulte que l'eau issue des résurgences de la nappe est susceptible d'être marquée à hauteur d'une centaine de Bq/L. Après dilution dans le cours du ruisseau des Roteures, l'activité volumique reste inférieure au seuil de détection.

Pour vérifier cette situation, des prélèvements ont été réalisés en aval du point R1 et ont donné lieu aux résultats suivants (Figure 7 et Tableau 1) :

- 1998 : un prélèvement en aval du hameau de La Chesnaye a été mesuré à 20 Bq/L ;
- mars 2003 : des prélèvements en amont et en aval du Hameau La Chesnaye ont présenté des résultats allant du seuil de détection (soit inférieurs à la limite de détection 19 Bq/L) jusqu'à 17 Bq/L ;
- octobre 2003 : un prélèvement effectué dans la Vallée (confluence avec le ruisseau des Roteures) dans le cadre d'une visite de surveillance de l'ASN a présenté une activité de 8,7 Bq/L.

Figure 7 : Points de mesures des activités Tritium



Il existe par ailleurs des mesures réalisées par l'ACRO, à l'aval du point R1, dépassant la centaine de Bq/L au point «La galerie» : 20 mesures ont été réalisées entre 2002 et 2004 et ont donné des résultats allant de 70 à 160 Bq/L.

Lors de la période de basses eaux 2007, au cours de laquelle la proportion d'eau de nappe drainée par le ruisseau est importante, plusieurs campagnes de prélèvements dans le bassin versant de ce ruisseau ont été réalisées par l'Andra, en aval du point R1 :

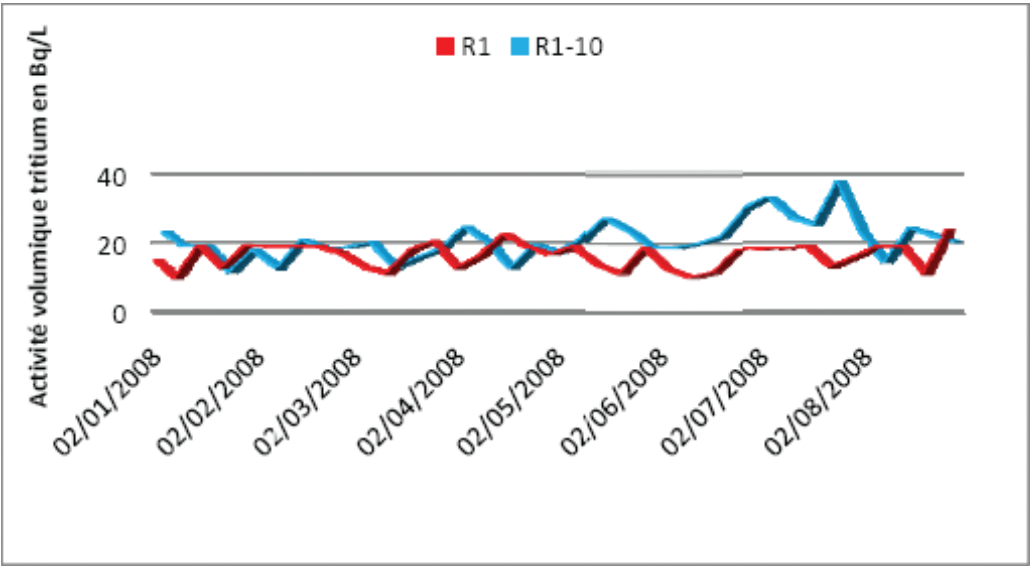
Tableau 1 : Activités volumiques en tritium dans le bassin versant des Roteures

Cours d'eau	Point de prélèvement	Campagne de prélèvement		
		17-18 sept	26 sept	23 oct
Roteures	Point R1 	9,3 Bq/L	13 Bq/L	12 Bq/L
Résurgence de la nappe	Les Grands Jardins 	19 Bq/L		24 Bq/L
Roteures	Hameau de la Chesnaye, Rue principale Lavoir 	9,8 Bq/L		
	Hameau de la Chesnaye, Limite Nord, Passage sous la route 	34 Bq/L	53 Bq/L	38 Bq/L
Résurgence de la nappe	Hameau de la Chesnaye, Surverse de mare. Affluent rive gauche des Roteures en amont du passage sous la route 	120 Bq/L		120 Bq/L

Ces différentes campagnes de mesure montrent que le marquage mesuré sur les eaux de surverse de mare (alimentée par des résurgences de la nappe) en rive gauche du ruisseau des Roteures présente un marquage similaire à celui des mesures ACRO au point « La galerie ».

A la suite de cette campagne de mesures et d'investigations, l'Andra a décidé de créer le point R1-10 (Figure 5), situé en aval du hameau la Chesnaye et qui intègre l'ensemble des résurgences. A partir de 2008, des prélèvements à fréquence hebdomadaire ont été effectués, afin de vérifier la pertinence de ce nouveau suivi et permettre d'envisager le remplacement du point R1 par le point R1-10 pour le prélèvement effectué dans le ruisseau des Roteures (Figure 8).

Figure 8 : Evolution des activités en tritium au point R1 et R1-10 en 2008



Les premiers résultats des mesures d'activité volumique du Tritium indiquent :

- Une évolution globalement similaire entre janvier et mai autour de la limite de détection ;
- Une séparation des deux courbes en période estivale ; l'activité tritium R1-R10 atteignant 38 Bq/L, la dilution par les eaux de ruissellement diminuant, la contribution de la résurgence par la mare devient plus importante.

En conclusion, ces résultats d'analyse mettent en évidence l'impact radiologique du CSM sur l'activité volumique dans la partie aval du ruisseau, à un faible niveau (<100 Bq/L en regard de l'arrêté du 11 janvier 2007), et confirme que le ruisseau des Roteures en R1 est hors influence du CSM.

1|4| Impact radiologique du tritium

Malgré des conditions d'exploitation et une conception de « 1ère génération » l'impact radiologique du CSM est très faible. La valeur maximale obtenue pour cumul des doses potentiellement reçues par individu du groupe critique (situé à la confluence entre les ruisseaux de la Sainte Hélène et du Grand Bel) est de 0,035 mSv/an en phase de surveillance, le tritium contribuant à hauteur de 2,5% de cette dose.

Bien que des traces de radionucléides d'origine artificielle aient été mesurées sporadiquement entre 1999 et 2000, ces résultats n'ont jamais été confirmés par les campagnes qui ont suivi et compte tenu du très faible niveau de ces activités, le seul radionucléide artificiel présent de façon récurrente est le tritium depuis l'incident de 1976. Suite à cette incident et à l'exploitation du centre, l'environnement est marqué durablement par du tritium dans les eaux souterraines. Ce marquage est à l'origine de la relative stabilité de l'activité volumique en tritium du Grand Bel (de l'ordre de 700 Bq/L) et a un impact sur l'eau du ruisseau des Roteures en aval du hameau La Chesnaye et ce principalement lors des périodes de basses eaux et de faibles dilutions. Ce retour d'expérience guide la conception et l'exploitation des nouveaux centres de stockage et incite à limiter fortement les quantités de tritium stockées.

2| Le centre de stockage FAMA de l'Aube

2|1| Description du centre

Créé par décret du 4 septembre 1989, le Centre de stockage de déchets de faible et moyenne activité à vie courte (CSFMA) de l'Aube est en exploitation depuis le 13 janvier 1992. D'une capacité de stockage d'un million de mètres cube, il sera exploité pendant encore une cinquantaine d'années. Le Centre est implanté sur trois communes : Soullaines-Dhuys, Epothémont et La Ville-aux-Bois. Il s'étend sur 95 hectares dont 30 hectares réservés au stockage des déchets et est bordé à l'ouest par la rivière des Noues d'Amance.

Les déchets de faible et moyenne activité destinés à être stockés au CSFMA contiennent essentiellement des radionucléides à vie courte (<30 ans) et ne contiennent qu'une faible proportion de radionucléides émetteurs alpha ou à vie longue (<0,37GBq/t pour l'activité massique de chaque colis des déchets).

2|2| Conception du stockage

Suite à l'expérience au centre de la Manche, un principe de stockage multi barrière en surface a été adopté au CSFMA afin d'éviter tout contact entre l'eau et les déchets et d'assurer la protection de l'homme et l'environnement sur le long terme.

Associés à ce dispositif, des réseaux de collecte distincts ont été mis en place pour permettre une gestion optimale des effluents liquides du centre (Figure 9). Il s'agit de :

- **un réseau de collecte des effluents** produits dans les bâtiments techniques qui comprend deux sous-réseaux distincts :
 - un réseau pour les effluents susceptibles d'être contaminés (Effluents

A). Ces effluents sont destinés à être rejetés dans l'environnement via le bassin d'orage, sous réserve du respect des limites radiologiques

- un réseau pour la récupération des liquides éventuellement présents dans les fûts de déchets au moment de leur compactage. Ces déchets font l'objet d'une élimination dans une installation agréée.

- **un réseau séparatif gravitaire enterré (RSGE)** qui permet de collecter les eaux éventuellement infiltrées au travers des ouvrages de stockage et donc susceptibles d'avoir été en contact avec les déchets radioactifs. Ces effluents sont soit rejetés au bassin d'orage soit orientés vers les cuves d'effluents liquides (effluents B).
- **un réseau des eaux usées** qui achemine les eaux résiduaires domestiques vers la station d'épuration. Après traitement biologique, les effluents de la station sont déversés dans le bassin d'orage.
- **le réseau de collecte des eaux pluviales** aboutissant au bassin d'orage.

2|3| Mesure des rejets du tritium

2|3|1| Surveillance des Installations

2|3|1|1| Rejets liquides

Une caractérisation radiologique, comprenant en particulier la mesure de l'activité volumique en tritium, est effectuée pour les effluents A et les effluents du RSGE.

Les effluents A sont dirigés vers le bassin d'orage si les résultats d'analyses préalables confirment en particulier que :

- l'activité en tritium est inférieure à 3000 Bq/L ;
- l'activité annuelle rejetée dans l'environnement (ruisseau des Noues d'Amance) est inférieure à 5 GBq.

Les eaux du RSGE peuvent suivre la même voie de rejet si elles respectent les mêmes limites que pour les effluents A et si les volumes produits sont conséquents (>100L).

Dans le cas contraire, ces effluents (effluents A et RSGE) sont considérés comme déchets liquides et évacués par citerne vers une station de traitement extérieure.

Ces limites de rejets sont définies dans l'arrêté de rejet du 21/08/2006 et en vigueur depuis cette date.

Auparavant, les rejets étaient assujettis aux prescriptions du SCPRI définies à la mise en exploitation du Centre ; concernant le tritium, ces prescriptions autorisaient le rejet d'effluents liquides au bassin d'orage à la condition que l'activité volumique ajoutée après dilution dans le bassin d'orage soit inférieure à 400 Bq/L.

Les rejets du bassin d'orage dans la rivière des Noues d'Amance s'effectuent automatiquement par l'intermédiaire des quatre pompes dont les mises en route sont étagées en fonction du niveau d'eau dans le bassin d'orage. Une surveillance des eaux du bassin d'orage permet notamment de contrôler l'activité volumique en tritium des eaux.

Valeurs mesurées

L'activité volumique maximale des effluents en tritium a été mesurée en 1994 à hauteur d'environ 3000 Bq/L ; ce rejet a généré une activité volumique ajoutée après dilution dans le bassin d'orage de 1,2 Bq/l (soit 0,3% par rapport aux prescriptions SCPRI). L'activité annuelle maximale en tritium rejetée au bassin d'orage est de $4,0 \cdot 10^{-2}$ GBq (figure 10).

Depuis 1993, la totalité des effluents produits sur le centre a été dirigée vers le bassin d'orage en respectant les autorisations (SCPRI de 1993 à 2006 et arrêté d'autorisation de rejet depuis 2006).

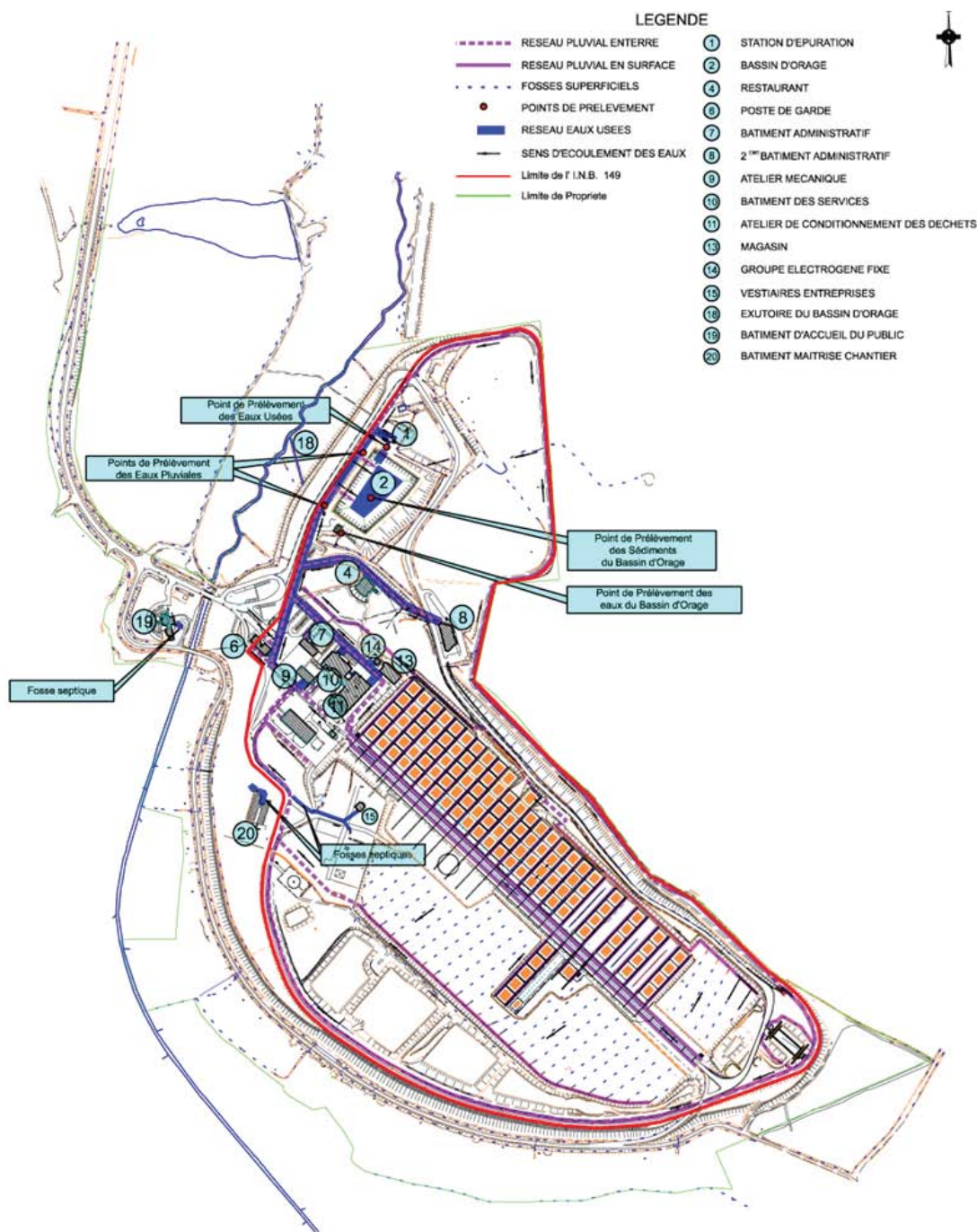
Les opérations de conditionnement des déchets représentent une source potentielle de transfert des radionucléides dans l'air rejeté par la cheminée par le biais du compactage des fûts de 200 L, de l'injection mortier dans les caissons de 5 et 10 m³ et du dégazage continu des effluents « B » entreposés dans des cuves dont les événements sont connectés sur la ventilation nucléaire.

Les filtres à très hautes efficacités (THE) sont en place dans les conduits de ventilation de façon à épurer les poussières et aérosols présents dans les effluents repris par la ventilation nucléaire. Toutefois, les effluents gazeux ne sont pas retenus par les filtres THE, tels que le tritium, les halogènes (iodes en particulier) et le carbone 14.

Valeurs mesurées

Des mesures a posteriori de tritium sont réalisées de façon systématique dans les prélèvements continus d'air effectués à l'émissaire de la cheminée de l'atelier de conditionnement des déchets (ACD) (Figure 10). Par ailleurs, un appareil de contrôle permet un suivi en continu du tritium dans l'air rejeté par la cheminée de l'ACD.

Figure 9 : Schéma de collecte des eaux usées et de ruissellement



De 1993 à 2008, l'activité maximale annuelle (provenant des pics enregistrés en 1995) rejetée à la cheminée de l'ACD est de $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq pour le tritium sous forme de gaz (HT), de $4,0 \cdot 10^9$ Bq de tritium sous forme de vapeur d'eau (HTO) et de $1,2 \cdot 10^{11}$ Bq pour HTO+HT. L'origine des pics incidentiels de juin et novembre 1995 semble être due à la présence d'ampoules de tritium dans les fûts compactés.

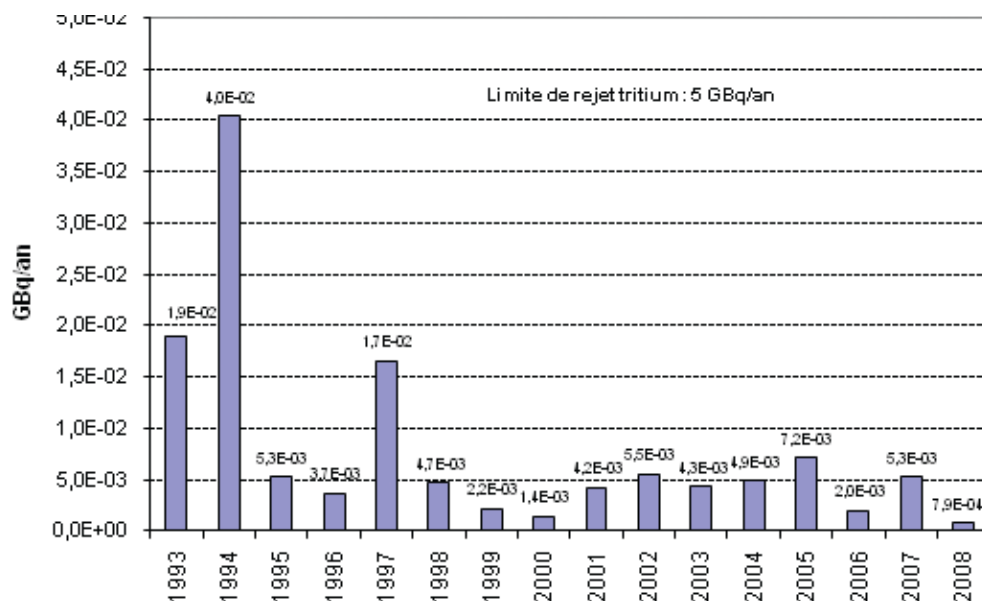


Figure 10 : Activités totales annuelles en tritium (HT+HTO) rejetées dans l'atmosphère depuis 1993 (autorisation de rejet mensuelle 50 GBq)

Ces rejets ponctuels n'ont pas eu d'influence sur la qualité de l'air ambiant mesurée aux points d'observation et de contrôle de la qualité de l'air.

2|3|2| Surveillance de l'environnement du centre

Les contrôles radiologiques environnementaux en tritium concernent l'air, les eaux de pluie, souterraines et superficielles, les végétaux terrestres et les éléments de la chaîne alimentaire (lait, céréales, champignons).

2|3|2|1| Eaux de pluies et de ruisseau

Pour les eaux de pluies, des activités volumiques significatives en tritium sont observées à des niveaux faibles (22 Bq/L au maximum). Ces marquages sont ponctuels et ne concernent que moins de 2 % des échantillons constitués depuis 1993.

Certains de ces marquages peuvent être corrélés à des activités notables en tritium dans les rejets gazeux du Centre. Toutefois, ils sont fréquemment détectés simultanément de part et d'autres des installations aux deux stations atmosphériques et sans lien apparent avec les chroniques de rejets gazeux, ce qui suggère une influence extérieure au Centre.

Depuis 1993, les activités volumiques en tritium des eaux de ruisseaux sont inférieures aux seuils de limites de détection (environ 8 Bq/L).

2|3|2|2| Activités dans la nappe

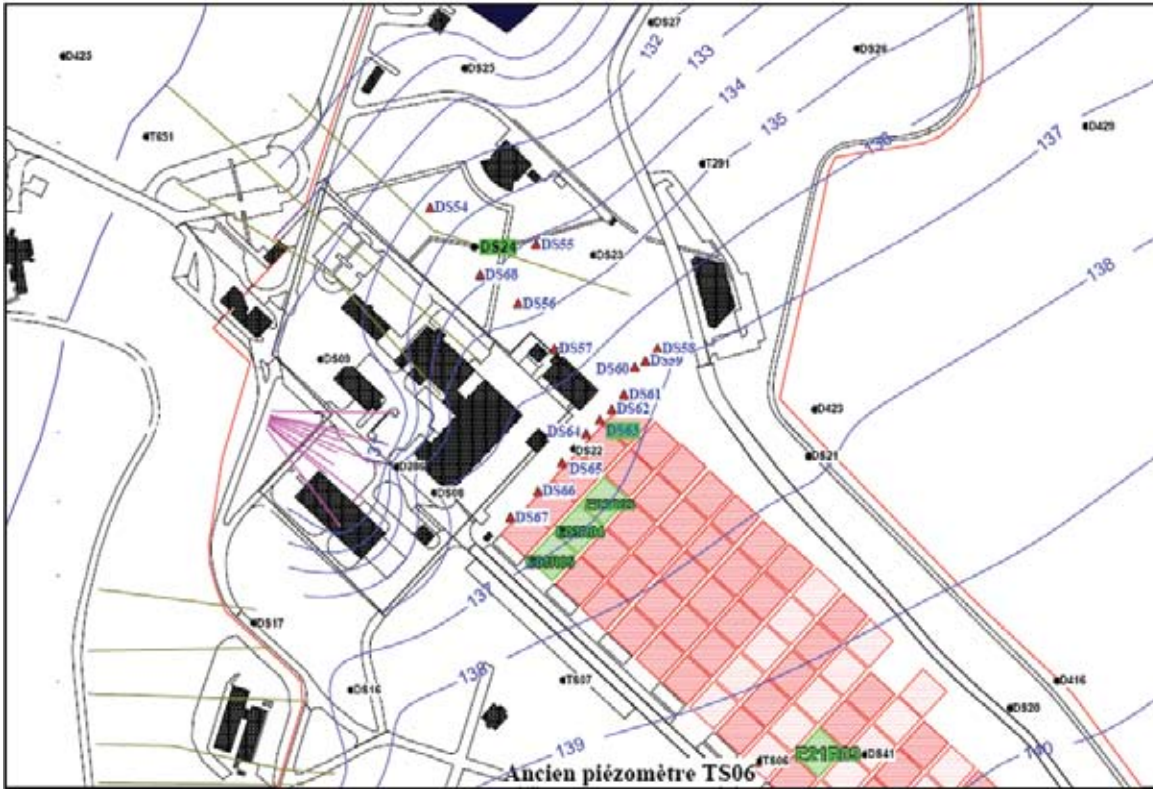
Des traces de tritium ont été mesurées dans les eaux de la nappe lors des premières années de surveillance entre 1992 et 1995. Les valeurs mesurées étaient faibles (maximum à 10,3 Bq/L en 1992), détectées en divers piézomètres situés sous et hors influence des écoulements du Centre et comparables aux mesures acquises lors de l'état de référence actualisé en 1990 (eau de puits à 8,1 Bq/L).

A partir de 1999, le suivi radiologique de la nappe a mis en évidence des traces de tritium en divers endroits situés sous influence des écoulements du Centre (Figure 11) :

- Piézomètre interne TS06 : un léger marquage en tritium varie du seuil de détection à 9,5 Bq/L pour la période de septembre 1999 à juin 2001. A compter de juin 2001, plus aucune mesure significative en tritium n'est relevée dans les eaux du TS06.
- Piézomètre interne DS24 : les résultats des analyses rendent compte d'activités significatives dont les teneurs ont augmenté d'août 2004 ($9,4 \pm 3,8$ Bq/L) à février 2005, puis se sont stabilisées jusqu'en décembre 2005, dans une gamme de valeurs comprises entre 11 et 17 Bq/L, autour d'une valeur moyenne de 14 Bq/L ; enfin, ces activités ont diminué progressivement jusqu'à un niveau proche du seuil de décision depuis août 2006. Plus aucun marquage n'y est observé depuis septembre 2008 (Figure 12).

Les investigations menées pour identifier l'origine de ces marquages conduisent à conclure que l'hypothèse la plus réaliste est celle d'une migration depuis les ouvrages de stockage. 60 % des activités tritium sont stockées dans les lignes d'ouvrages E3 et E21 (1,03 TBq en E3R03, 6,16 TBq en E3R04, 3,44 TBq en E3R05, 5,98 TBq en E21R02 et 6,33 TBq en E21R03) ; pour l'ouvrage E21 R03, le tritium est stocké sous forme de plaques radio-luminescentes.

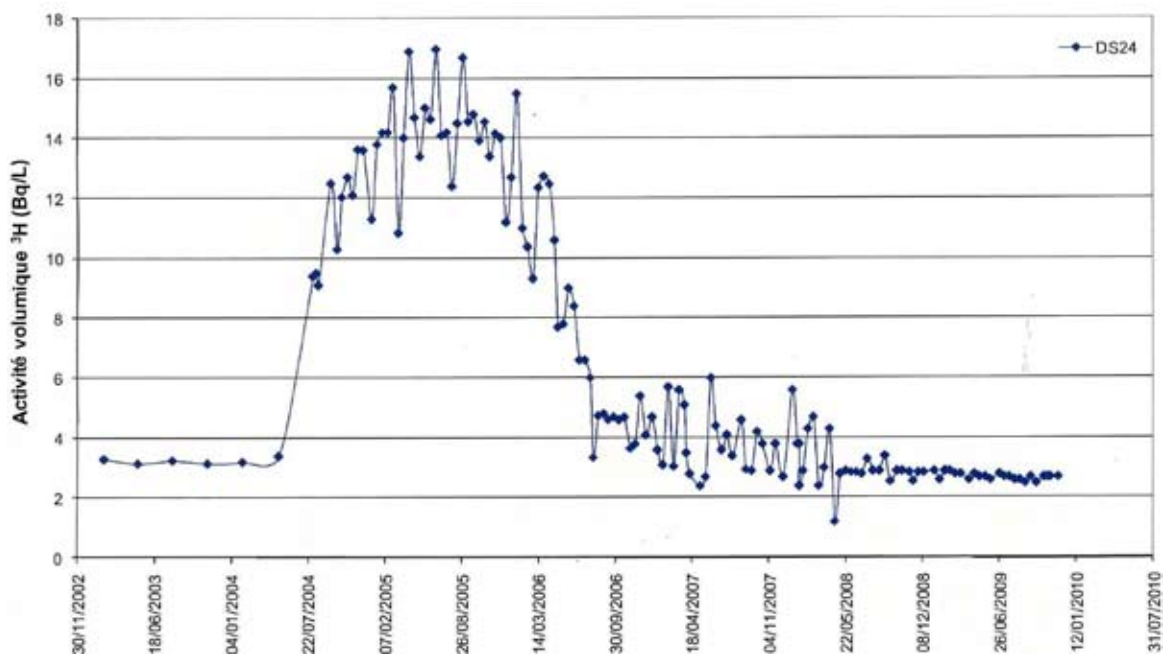
Figure 11 : Plan de localisation des piézomètres



Cette origine semble confirmée par les prélèvements d'air qui ont mis en évidence des indices de dégazage très marqués dans l'air de la conduite du RSGE de l'ouvrage E21R03 (en moyenne environ 350 Bq/m³ en HTO et 350 000 Bq/m³ en HT sur la période 1999-2006).

Les résultats des calculs de diffusion gazeuse ont conforté la possibilité d'un relâchement depuis cet ouvrage. L'injection de ces colis dans l'ACD en 1994 avait par ailleurs donné lieu à un marquage des effluents A à hauteur de 3000 Bq/L, valeur jamais atteinte depuis à ce jour.

Figure 12 : Evolution des activités volumiques en tritium dans les eaux prélevées DS24



Les marquages dans la nappe au piézomètre DS24 ont conduit à la réalisation de piézomètres complémentaires (DS54 à DS68) en août 2005 (Figure 11).

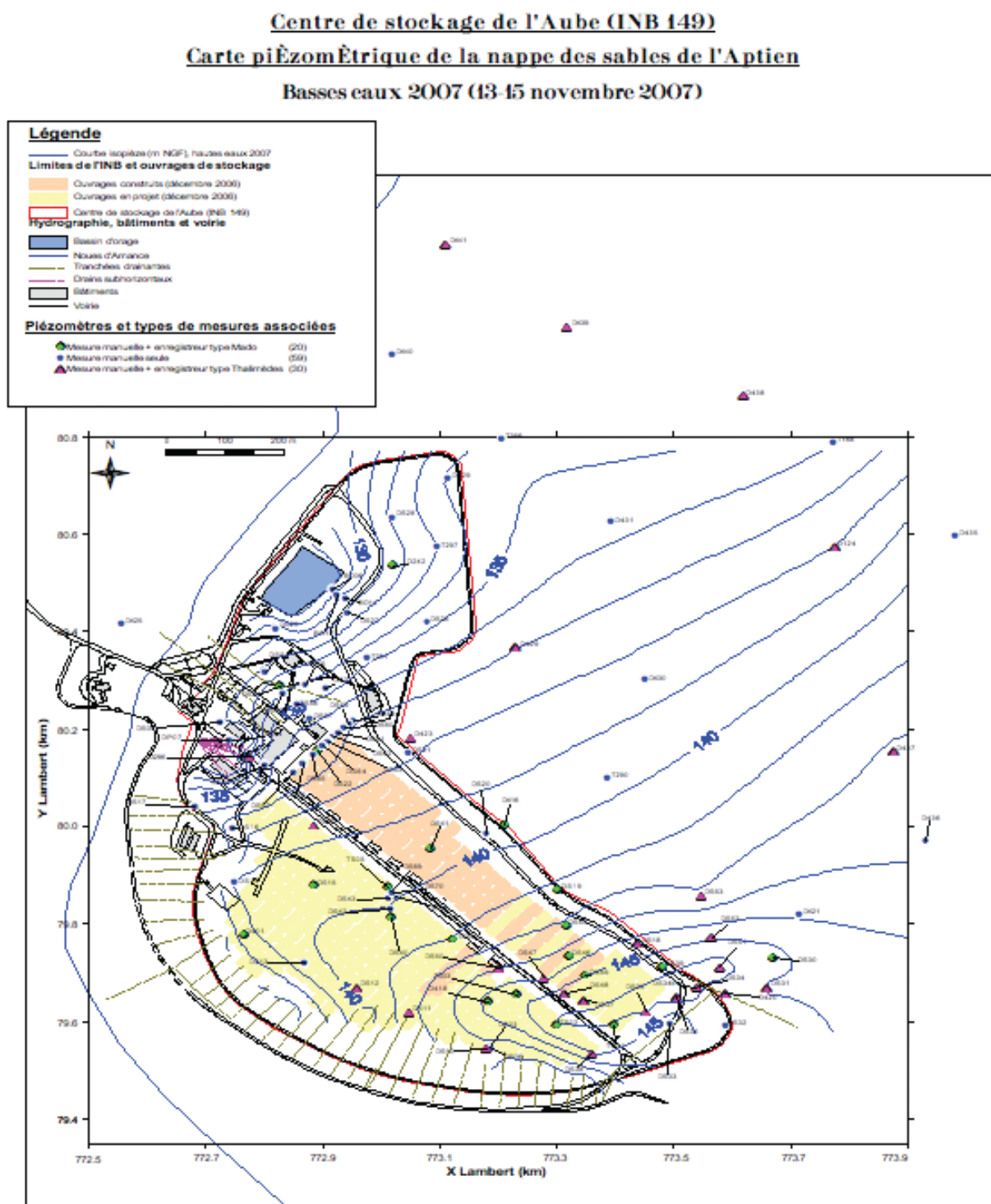
Depuis 2005, une surveillance spécifique est conduite afin de caractériser plus précisément la trajectoire du tritium dans la nappe, partant de l'hypothèse d'un relâchement depuis l'ouvrage E21R03 et de détecter de façon précoce toute évolution du niveau d'activité en tritium des eaux souterraines.

Pour ce faire des prélèvements d'eaux sont effectués à l'aval de la plateforme de stockage dans quelques points du réseau de piézomètres spécifiquement réalisé. Ces points de prélèvements interceptent les écoulements en provenance des lignes E3 et E21, selon un maillage resserré comme le montre la figure 11.

Ceci a permis d'identifier la présence de tritium en d'autres points du réseau piézométrique et d'en suivre l'évolution au même titre que le forage DS24. Le point marquant de cette surveillance rapprochée est la détection de tritium dans les eaux des forages DS63 et DS62, distants de 12,5 m. Ces points, localisés à proximité des ouvrages E01R02 et E01R01, sont situés sur une ligne d'écoulement transitant en amont sous l'ouvrage E21R03 et passant en aval au droit ou au voisinage de DS24 (Figure 13).

En DS63, les teneurs mesurées ont diminué progressivement d'environ 13 Bq/L en 2005 à des valeurs proches du seuil de décision au 1er semestre 2007 (Figure 14). En DS62, les activités sont restées comprises entre 4 et 8 Bq/L au cours de la même période.

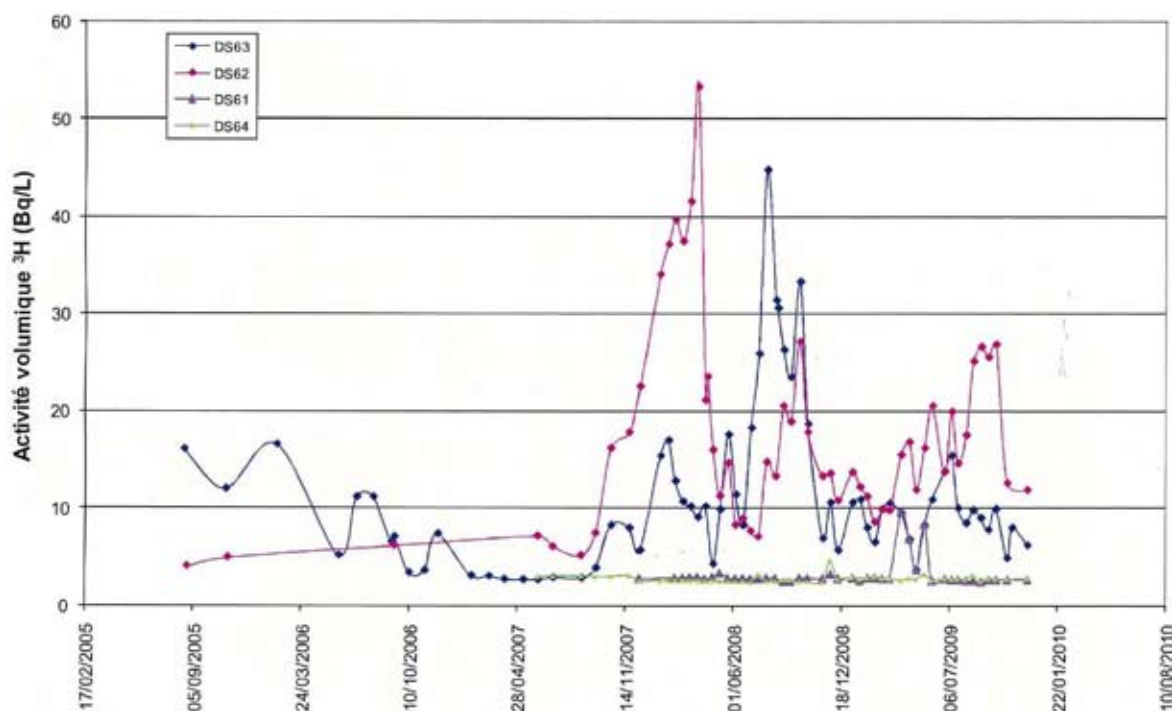
Figure 13 : Localisation des piézomètres et sens des écoulements de la nappe



Depuis octobre 2007, des fluctuations des niveaux d'activité sont observées en ces deux points ; l'activité en tritium a atteint un maximum de 53,3 Bq/L en DS62 (mars 2008) et 44,5 Bq/L en DS63 (août 2008).

Au cours de l'année 2008, les piézomètres situés à plus de 12,5 m, de part et d'autre de DS62 et DS63 (forages DS61 et DS64) ne rendent pas compte de marquage notable (seulement 18% de valeurs significatives de l'ordre du seuil de décision, affichant une valeur maximale de $3,4 \pm 2,9$ Bq/L), confirmant ainsi que le tritium se disperse faiblement dans les eaux de la nappe de l'Aptien, résultats conformes aux essais de traçages réalisés in situ en 2003-2004.

Figure 14 : Evolution des activités volumiques en tritium aux points du DS63 et DS62



2|4| Evaluation quantitative des rejets diffus

Les déchets et les effluents liquides sont susceptibles de laisser s'échapper des radioéléments sous forme gazeuse. Une partie est reprise dans le circuit de ventilation et de rejet de l'atelier de conditionnement des déchets et ainsi comptabilisée dans les rejets à la cheminée. Pour le reste, les dégazages, émis plus ou moins directement vers l'atmosphère, sont issus principalement :

- des ouvrages de stockage en cours de remplissage ou après fermeture,
- des galeries souterraines du RSGE situées sous ou le long des ouvrages de stockage,
- des opérations d'injection de colis de grande dimension en ouvrage, comme dans le cas des couvercles de cuve,
- des colis présents dans le bâtiment de transit ou en attente de déchargement,
- des sorbonnes du laboratoire d'analyse du bâtiment des services.

Suite à la détection de tritium dans la nappe phréatique, une fraction du dégazage peut également provenir de la nappe phréatique au droit du Centre ou des terrains sus-jacents.

Pour l'évaluation quantitative de ces rejets diffus, on retient que le terme source principal est constitué par les colis de déchets, et que le radionucléide concerné est principalement du tritium qui peut migrer à la fois sous forme de gaz (HT) ou de vapeur d'eau (HTO).

Dès leur réception sur le Centre, les colis de déchets sont supposés dégazer directement vers l'atmosphère jusqu'à la fin de l'exploitation de leur ouvrage de stockage. Quand les ouvrages sont fermés, le tritium doit diffuser au travers des bétons pour parvenir à l'atmosphère.

Comme il n'est pas possible de collecter les émanations de tritium issues des ouvrages en exploitation ou au travers des parois en béton des ouvrages de stockage fermés, l'évaluation des rejets gazeux diffus est réalisée par calcul, au contraire des rejets à la cheminée de l'ACD basés sur des mesures ou à défaut des seuils de décision.

L'évaluation est réalisée en considérant l'inventaire en tritium des colis stockés dans chaque ouvrage, la décroissance radioactive et des taux de dégazage (fraction d'inventaire dégazée annuellement sous forme HT et sous forme HTO) définis selon la nature du déchet et déterminés par mesure directe sur colis dans le cadre du processus d'agrément.

Du fait de propriétés de migration différentes entre les formes HT et HTO au sein des ouvrages de stockage fermés, les rejets diffus sous forme HTO évoluent, d'une année sur l'autre, uniquement en fonction des livraisons de déchets, alors que les rejets en HT tendent à augmenter d'une année sur l'autre par cumul du dégazage issu des ouvrages de stockage en exploitation avec celui des ouvrages fermés.

Pour l'année 2008, 1,2 TBq de tritium ont été livrés sur le Centre, ce qui porte à près de 50,8 TBq le cumul de tritium réceptionné dans les ouvrages de stockage depuis le début de l'exploitation.

2|5| Evaluation du risque du tritium pour la population environnante



Depuis 1993, l'activité pour le tritium dans les rejets gazeux ou liquides, depuis l'épisode de rejets de 1995, a toujours été inférieure aux limites de rejet (arrêté d'autorisation de rejets du CSFMA du 21 août 2006).

En considérant les activités limites autorisées des rejets pour le tritium faisant l'objet de l'arrêté d'autorisation de rejets du CSFMA du 21 août 2006 et les impacts en situation normale pour le groupe de référence CD24 le plus pénalisant : la dose cumulée due au tritium et reçue par un individu du groupe CD24 exposé pendant 50 ans aux rejets liquides et gazeux serait d'environ $3,3 \cdot 10^{-3}$ mSv.

Afin de préciser l'impact des rejets gazeux et liquides du tritium par le CSFMA sur l'environnement la constitution d'un état radioécologique dans l'environnement est en cours en particulier pour quantifier le tritium susceptible d'être lié à la matière organique. Des premiers prélèvements effectués simultanément avec l'ACRO sur des arbres et des végétaux n'ont pas mis en évidence de marquage.

En ce qui concerne spécifiquement la nappe malgré des dispositions de conception et d'exploitation exemplaires, on observe par endroit et par moment quelques émergences dans la nappe sous le centre. Les investigations menées depuis 2005 conduisent à attribuer le marquage en tritium des eaux souterraines à la migration d'un panache ayant pour origine un relâchement au niveau de l'ouvrage E21R03. Des études complémentaires sont en cours pour caractériser plus finement les phénomènes de migration gazeuse du tritium.

Le tritium mis en évidence au droit du DS24 d'août 2004 à août 2006, poursuit sa migration en aval du forage, en direction des Noues d'Amance.

A ce jour, concernant les forages DS62 et DS63, il n'est pas possible d'être catégorique sur l'origine des niveaux de tritium, notamment depuis le dernier trimestre 2007, et sur la raison des fluctuations observées. Compte tenu de l'implantation de ces deux forages par rapport aux lignes d'écoulement, l'hypothèse la plus probable reste la migration depuis l'ouvrage E21R03, attribuant ainsi une même origine aux marquages observés depuis 1999 dans les eaux souterraines.

Il n'est toutefois pas exclu qu'un autre ouvrage apporte une contribution au marquage observé.

3| Conclusion

Le Centre Manche est le premier centre de stockage de déchets radioactifs en France. Depuis son ouverture, il y a 50 ans, les conditions d'exploitation et les règles de conception des ouvrages n'ont cessé d'évoluer avec l'expérience acquise par l'exploitation et la surveillance du centre. Cette évolution est allée vers de plus en plus de fiabilité et malgré une technologie de « première génération » l'impact radiologique du CSM reste faible. Cependant suite à l'exploitation du site, l'environnement est marqué durablement par le tritium. Le retour d'expérience sur ce centre a guidé la conception et l'exploitation des nouveaux centres de stockage. Concernant le centre de stockage de l'Aube des dispositions exemplaires ont été adoptées pour son fonctionnement. Malgré ces dispositions on observe par endroit et par moment quelques émergences dans la nappe sous le centre.

Sur la base de l'expérience acquise sur ces deux centres, l'Andra a tiré des conséquences pour l'acceptation en stockage des colis contenant du tritium :

- Un principe : le marquage de la nappe pour le tritium ne doit pas dépasser 100 Bq/L
- Une ligne de conduite : la gestion prudente de la capacité radiologique
- Des règles contraignantes : un taux de dégazage à ne pas dépasser et une limitation des activités en tritium des colis destinés à être conditionnés sur le Centre.

Métrologie

Sommaire

174 Métrologie du tritium :
cas du tritium
organiquement lié (CETAMA)

Métrieologie du tritium : cas du tritium organiquement lié (TOL)

N. Baglan¹, E. Ansoborlo²

¹CEA/DAM/DIF

²CEA/DEN/DRCP/CETAMA

1 | Introduction

Le tritium est un émetteur β ayant une énergie moyenne de $5,68 \pm 0,01$ keV, une période de $12,312 \pm 0,025$ ans (LNE-LNHB/CEA, 2006) et une activité spécifique de $3,58 \cdot 10^{14}$ Bq.g⁻¹.

Sa présence dans l'environnement a deux origines : soit naturelle, suite à l'interaction des neutrons cosmiques sur l'azote ou l'oxygène, soit anthropique, avec plusieurs sources possibles comme l'émission et la décroissance des retombées liées aux anciens essais nucléaires atmosphériques, les installations de traitement et recyclage de combustibles irradiés, les réacteurs nucléaires et quelques sources industrielles (Belot et al., 1996 ; Guétat et al., 2008 ; Lebaron-Jacobs et al., 2009).

Il peut exister sous des formes physiques très différentes : sous forme d'hydrogène gaz (HT), d'eau ou de vapeur d'eau (HTO) ou de méthane (CH₃T). Dans les échantillons du règne végétal ou animal, on le trouve souvent associé à la fraction eau libre, mais il peut être inclus dans les composés organiques sous forme de tritium organiquement lié (TOL). Dans ce cas, 2 formes existent : i) la fraction dite échangeable ou labile (TOL-E) où il est lié à des atomes d'oxygène, de soufre et d'azote ; ii) la fraction dite non échangeable (TOL-NE) où il est lié aux atomes de carbone (Belot et al., 1996). Enfin dans certains cas (ITER) il peut être présent sous forme solide d'hydrures métalliques (Zr, Ti, Be, Hf, C...) (Maubert et Di Pace, 2008).

L'eau est intégrée à la matière organique des plantes lors de la photosynthèse, suivie de nombreuses réactions biochimiques qui conduisent à un peu plus d'un million de composés organiques. Chaque molécule a un devenir particulier, très différent de l'eau de constitution des cellules.

La CIPR (ICRP 30, 1978) considère par simplification que le tritium organique est pour moitié retransformé rapidement en eau ($T_{1/2} = 10$ j) et pour moitié, a une durée de vie égale à la durée de vie moyenne observée pour le carbone ($T_{1/2} = 40$ j). De ce fait l'exposition par unité de tritium incorporée est plus forte pour le tritium organiquement lié que

pour le tritium de l'eau (facteur 2 à 3 selon l'âge). Il convient alors de distinguer les deux formes chimiques et d'être rigoureux dans l'utilisation du « concept » de tritium organiquement lié. Il s'agit d'un ensemble de molécules du bol alimentaire.

La mesure du tritium sous ses différentes formes est donc une étape clé importante pour l'évaluation des risques sanitaires et environnementaux et in fine l'estimation dosimétrique.

La Commission d'établissement des méthodes d'analyse (CETAMA) au sein du CEA, a pour mission de contribuer à la qualité des résultats de mesures et analyses en menant différentes actions appropriées, dont l'organisation et l'interprétation de circuits d'intercomparaison. Le but est d'accompagner les démarches d'amélioration et de validation de méthodes et des techniques analytiques. Ainsi la demande des laboratoires chargés de la surveillance dans l'environnement a conduit à la création d'un groupe de travail (GT 31 « Tritium ») sur l'analyse du tritium dans l'environnement (tritium libre et TOL), et l'organisation de circuits d'intercomparaisons sur échantillons frais ou secs prélevés dans l'environnement.

2 | Intérêts et besoins de l'analyse du tritium organiquement lié (TOL)

Le séminaire « Tritium » organisé par la SFRP en septembre 2009, réunissant plus de 200 personnes concernées par cette thématique (exploitants, radioprotectionnistes, chercheurs, métrologistes, représentants de l'ASN, et des CLI...), a conduit à un certain nombre de questions posées par le tritium en général (Métivier et al., 2009). Parmi ces questions, les problèmes liés à la biodistribution et la bioaccumulation du tritium et donc à la spéciation de ce radionucléide chez l'homme et dans l'environnement, ont souligné un besoin en analyse dans le domaine des faibles valeurs (quelques Bq.L⁻¹) et plus précisément en ce qui concerne le tritium organiquement lié (TOL).

3 | Etat de l'art sur l'analyse du tritium libre et du TOL

3|1 | Aspect Normatif

Les normes rattachées à la thématique environnementale sont peu nombreuses et deux d'entre elles se rapportent aux rejets (NF EN 60-761-5 et NF M 60-312). Les autres normes répertoriées sur le site de l'AFNOR (Association Française de Normalisation) traitent de l'analyse du tritium dans les eaux. Signalons la norme internationale PR NF ISO 9698 « Water quality – Determination of tritium activity concentration – liquid scintillation counting method » en cours de validation (2009-2010) au niveau français, ainsi que la norme NF M 60-802-1 « Mesure de la radioactivité dans l'Environnement-Eau » de juillet 2000, qui comporte 2 parties relatives au tritium :

- Partie 1 : Mesurage de l'activité des émetteurs bêta dans les eaux par scintillation liquide cas particulier du tritium.
- Partie 3 : Mesurage de l'activité des émetteurs bêta dans les eaux par scintillation liquide cas particulier de la présence simultanée du tritium et du Carbone 14.

En complément de ces 2 normes où la thématique du tritium organiquement lié (TOL) n'est pas évoquée, 2 méthodes d'analyse dans des matrices biologiques ont été élaborées et testées au sein du GT 31 de la CETAMA « Analyse de radionucléides dans l'environnement : sous-groupe Tritium » :

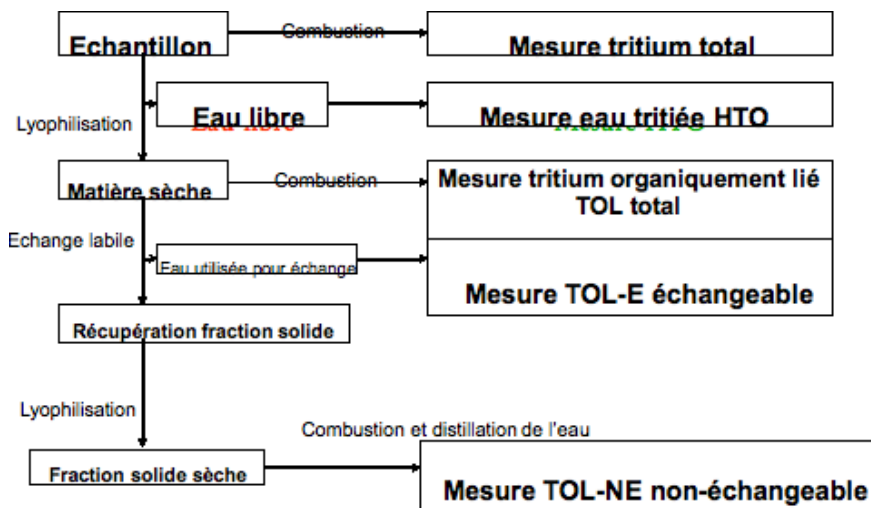
- Méthode 380 : « Prélèvement, sélection, qualification et conservation d'une eau de référence tritium en vue de mesures tritium par scintillation liquide » qui constitue un guide pour la préparation de l'échantillon avant analyse.
- Méthode 384 : « Dosage du tritium dans des matrices biologiques »

3|2 | Prélèvement et traitement des échantillons

Les échantillons végétaux prélevés et utilisés pour les circuits intercomparaison, sont en général des herbes et/ou de feuilles d'arbres d'une même espèce abondante dans la zone échantillonnée. Lorsque cela est possible, l'échantillon est traité et analysé directement. A l'issue du prélèvement, les échantillons sont généralement séchés afin d'en éliminer l'eau libre. Si les échantillons n'ont pas pu être séchés, le stockage dans des emballages étanches ne doit pas être trop long, au plus quelques jours, afin d'éviter une dégradation de la matière organique qui en modifierait considérablement la structure. Le transport doit évidemment éviter le passage par un centre tritigène.

Les différentes formes du tritium qui coexistent dans les échantillons environnementaux doivent être séparées (voir figure 1 ci-dessous).

Figure 1 : Analyse du tritium dans les échantillons de l'environnement



La préparation des échantillons dépend de la mesure souhaitée. La mesure du tritium total est effectuée par combustion directe de l'échantillon. L'isolation des différentes fractions nécessite ensuite des étapes plus ou moins nombreuses et complexes.



3|2|1 | Extraction de l'eau libre et mesure du tritium sous sa forme HTO

La lyophilisation (ou cryodessiccation sous vide) est la méthode actuellement la plus utilisée par les laboratoires pour éliminer l'eau libre et a généralement remplacé la distillation azéotropique qui utilisait des solvants organiques. Elle consiste à congeler rapidement l'échantillon et à le placer dans une enceinte où règne un vide poussé (< 1 mbar). L'eau de l'échantillon se dégage alors par sublimation et est récupérée dans un piège froid. La lyophilisation peut être réalisée au laboratoire ou bien sur le terrain à l'aide d'un dispositif mobile. La durée de l'extraction est liée à la masse d'eau minimale nécessaire au comptage par scintillation liquide (10 g) ; d'où une durée moyenne de 24 h.

Une fois l'échantillon sec, il est possible de réaliser une combustion pour déterminer le tritium organique total ou bien de continuer le traitement afin de différencier le tritium organique lié échangeable et le tritium organique lié non échangeable

3|2|2 | Extraction du Tritium Organique Lié Echangeable (TOL-E)

Dans les végétaux, le tritium organique lié échangeable (TOL-E) est très labile et s'échange rapidement avec l'hydrogène de la vapeur d'eau atmosphérique ou de l'eau liquide. Cette propriété est utilisée pour l'éliminer par échange isotopique avec de l'hydrogène « léger ». Lors de cette opération appelée « échange labile », l'échantillon préalablement séché et broyé est plongé dans de l'eau tritiée. Un équilibre isotopique s'établit entre le tritium organique labile et l'eau d'échange, rajoutée en excès (environ 1 L) jusqu'à ce que l'activité résiduelle en tritium organique échangeable soit devenue négligeable. Suite à cette opération, l'eau d'échange est éliminée par filtration ou bien par centrifugation pour des échantillons préalablement réduit en poudre. Les échantillons étant humides à la fin de cette étape, un séchage par lyophilisation est ensuite nécessaire. A l'issue de cette étape, l'échantillon ne contient désormais plus que la fraction non échangeable du tritium organique lié

et peut être calciné dans un four tubulaire si la mesure est réalisée par scintillation liquide ou introduit dans un ballon de quartz dans l'optique d'une mesure par spectrométrie de masse.

3|2|3 | Extraction du tritium lié à la matière organique (TOL-NE)

Lorsque l'eau libre et le tritium organiquement lié échangeable ont été extraits, il reste encore du tritium sous forme de TOL-NE. Cette fraction est extraite par combustion dans un four tubulaire de diamètre suffisant pour le traitement d'échantillons de masse élevée (jusqu'à 40 g) afin de récupérer la masse d'eau de combustion nécessaire à une mesure optimale par scintillation liquide. (Pointurier et al., 2004 ; Baglan et al., 2005). Une photo du four utilisé est présentée Figure 2.

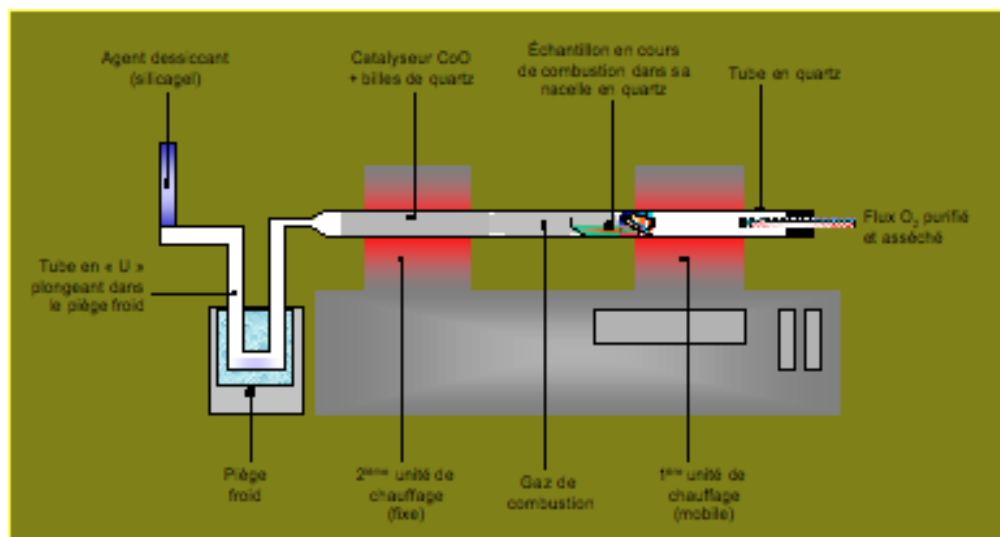
Le four est composé d'un tube en quartz inséré dans deux unités chauffantes. Le tube en quartz est balayé par un flux constant d'oxygène pur et sec. L'échantillon, mis dans la nacelle de quartz, est placé dans le tube au niveau de la première unité chauffante (450°C).

Figure 2 : Four à combustion utilisé en laboratoire.



Le tube contient aussi, au niveau de la deuxième unité chauffante (850°C), un mélange catalyseur à base d'oxyde de cobalt (Figure 3). La première unité chauffante est mobile de façon à ce que la combustion se déroule à une allure optimale. La combustion ne doit pas être menée trop rapidement afin de limiter le risque de déflagration et de laisser suffisamment de temps pour l'oxydation catalytique des gaz de combustion. En revanche, une combustion menée trop lentement peut conduire à une combustion fractionnée par extinctions de flammes. La première unité permet donc une combustion complète et lente de l'échantillon qui est entièrement réduit en cendres.

Figure 3 : Schéma de principe de la combustion des échantillons



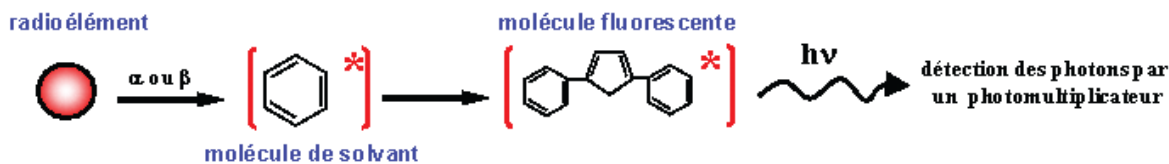
La deuxième unité chauffante permet l'oxydation catalytique des gaz de combustion pour former les eaux de combustion recueillies dans un piège froid placé à la sortie du tube. Le piège froid est constitué d'un « tube en U » plongeant dans une solution refroidie à -20°C environ. L'eau récupérée est généralement acide ($\text{pH} \approx 1$). Pour réaliser la mesure par scintillation liquide, il est indispensable de la neutraliser (addition de peroxyde de sodium - Na_2O_2) avant distillation. La distillation permet ensuite d'éliminer les divers sels formés lors de la combustion avant l'ajout du liquide scintillant. Le mélange une fois homogénéisé est introduit dans le détecteur pour comptage et détermination de l'activité tritium.

4 | Technique d'analyse

La technique de référence utilisée couramment en routine pour l'analyse du tritium, est la scintillation liquide (Theodorsson, 1999 ; Cassette, 2004 ; Pointurier et al., 2004) permettant de mesurer des concentrations de l'ordre de quelques Bq.L⁻¹.

Son principe de base (Figure 4) est l'utilisation d'un cocktail scintillant qui permet de transformer le rayonnement β (e.g. tritium) en photons, qui sont collectés sur un photomultiplicateur et comptés hors du liquide. Cette technique repose sur une cascade de transfert d'énergie dont les vecteurs sont le rayonnement ionisant, les électrons, les photons lumineux et les électrons du photomultiplicateur. Les appareils modernes de comptage par scintillation liquide ont des limites de détection relativement faibles autorisant la mesure d'activités atteignant de l'ordre du Bq.L⁻¹ (Pointurier et al., 2003) Les inconvénients principaux de cette technique résident dans son rendement énergétique global qui est faible et variable en fonction de la composition de la source scintillante. Cela impose de calculer le rendement de détection pour chaque condition de mesure.

Figure 4. Principe simplifié de la scintillation liquide



La spectrométrie de masse (Clarke et al., 1976 ; Surano et al., 1992), utilisant la décroissance de ³H en ³He⁺ suivie d'une détection par un multiplicateur d'électrons fonctionnant en mode comptage, est une technique complémentaire, permettant d'atteindre des valeurs plus faibles (< 0,5 Bq.L⁻¹), mais sur avec des temps de comptage beaucoup plus long (quelques mois)

4|1| Calcul des activités en tritium et formules utilisées en scintillation liquide

Indépendamment de la fraction analysée, l'activité déterminée est dans un premier temps l'activité massique du tritium dans l'eau.

L'activité massique A_m^{HTO} d'un échantillon en Bq.kg⁻¹ est calculée à l'aide de la formule (1) :

$$A_m^{HTO} = \frac{10^3}{60} \times \frac{(n - n_0)}{(\epsilon \times m)}$$

L'incertitude finale $U_{A_m^{HTO}}$ (2) sur le résultat de cette formule (1) est donnée avec un facteur d'élargissement k égal à 2.

$$U_{A_m^{HTO}} = 2 \times u_{A_m^{HTO}} = 2 \times \sqrt{\left(\frac{\frac{n}{t} + \frac{n_0}{t_0}}{(n - n_0)^2} + \left(\frac{u_\epsilon}{\epsilon} \right)^2 + \left(\frac{u_m}{m} \right)^2 \right)}$$

- m, masse d'eau (g) ;
- n et n₀, taux de comptage de l'échantillon et du blanc (coups par minute ou cpm) ;
- t et t₀, temps de comptage de l'échantillon et du blanc (min) ;
- ϵ , rendement de détection (nombre sans dimension compris entre 0 et 1) ;

- u_ϵ , incertitude sur le rendement ;
- u_m , incertitude sur la masse ;
- 10³, facteur de conversion (g⁻¹ en kg⁻¹),
- 60, facteur de conversion (min en s).

Lors de l'analyse du tritium présent dans l'eau, cette unique formule suffit.

Par contre, pour des échantillons environnementaux l'activité mesurée dans l'eau (de lyophilisation ou de combustion) est ramenée à celle présente dans l'échantillon frais (ou sec). Les formules présentées ci après, à titre d'illustration, pour le TOL-NE s'appliquent donc également pour le TOL.

4|2| Calcul de l'activité en tritium organiquement lié non échangeable

L'activité massique peut aussi être exprimée en Bq.kg⁻¹ de matière sèche ou de matière fraîche. Il faut alors relier la mesure de l'activité dans l'eau de combustion à l'activité de la matière sèche ou fraîche par l'intermédiaire du rendement hydrogène pendant la combustion.

L'activité A_s^{TOL-NE} de la fraction tritium organiquement lié Non Echangeable en Bq.kg⁻¹ de matière sèche s'exprime comme suit (3) :

$$A_s^{TOL-NE} = A_m^{HTO} \times \frac{r_H^{mo}}{r_H^{eau}}$$

et l'incertitude $U_{A_s^{TOL-NE}}$ associée par la relation (4) :

$$U_{A_s^{TOL-NE}} = 2 \times A_s^{TOL-NE} \times \sqrt{\left(\frac{u_{A_m^{HTO}}}{A_m^{HTO}} \right)^2 + \left(\frac{u_{r_H^{eau}}}{r_H^{eau}} \right)^2 + \left(\frac{u_{r_H^{mo}}}{r_H^{mo}} \right)^2}$$

- r_H^{eau} , pourcentage massique d'hydrogène dans l'eau ;
- r_H^{mo} , pourcentage massique d'hydrogène dans la matière organique.

L'activité A_f^{TOL-NE} de la fraction Tritium Organiquement Lié Non Echangeable en Bq.kg⁻¹ de matière fraîche s'exprime comme suit (5) :

$$A_f^{TOL-NE} = A_m^{HTO} \times \frac{r_H^{mo}}{r_H^{eau}} \times \frac{m_s}{m_f} = A_s^{TOL-NE} \times \frac{m_s}{m_f}$$

et l'incertitude $U_{A_f^{TOL-NE}}$ associée par la relation (6) :

$$U_{A_f^{TOL-NE}} = 2 \times A_f^{TOL-NE} \times \sqrt{\left(\frac{u_{A_s^{TOL-NE}}}{A_s^{TOL-NE}} \right)^2 + \left(\frac{u_{m_f}}{m_f} \right)^2 + \left(\frac{u_{m_s}}{m_s} \right)^2}$$

- m_s , masse de matière sèche totale récupérée avant la combustion (g) ;
- m_f , masse de matière fraîche introduite au début du traitement (g).

4|3| Calcul des teneurs en tritium après mesure par spectrométrie de masse

Pour une mesure par spectrométrie de masse, l'échantillon est placé dans un ballon en verre, préalablement purgé, puis scellé. Le ballon est ensuite stocké le temps nécessaire à l'obtention d'une quantité d'hélium 3 (^3He), par décroissance du tritium ($T_{1/2} = 12,312$ ans), suffisante à la mesure.

Les ions $^3\text{He}^+$ sont détectés par un multiplicateur d'électrons fonctionnant en mode comptage. La ligne de base générée principalement par l' ^3He (10^{-19} mol) résiduel dissous dans l'échantillon après pompage est déduite de la mesure d' ^4He en appliquant le rapport isotopique de l'hélium atmosphérique $1,38 \times 10^{-6}$. Le rapport T/H pour l'échantillon est déduit de la mesure de l' ^3He issu de la décroissance du tritium d'après (7) :

$$\frac{T}{H} = \frac{{}^3\text{He}}{m \times [H] \times (1 - e^{-\lambda t})}$$

- m, la masse de l'échantillon (en kg),
- [H], la concentration en hydrogène (en mol.kg $^{-1}$),
- λ la constante radioactive du tritium,
- t le temps de stockage.

Cette technique permet d'obtenir des limites de détection très faibles ($< 0,5$ Bq.L $^{-1}$), intéressantes pour des applications environnementales. Néanmoins, elle est corrélée avec des temps de stockage avant mesure généralement supérieures à une journée, incompatibles avec les exigences de la surveillance réglementaire.

5| Contraintes de l'analyse à bas niveau

Les critères pour réaliser une bonne analyse tritium sont nombreux. Parmi ceux-ci, la maîtrise de la mesure et des différents matériels et équipements comme : i) le flaconnage, ii) une eau de référence, iii) un étalon d'eau tritiée, iv) l'étalonnage ou ajouts dosés et v) la statistique de comptage; sont nécessaires et indispensables à la mise en place d'une procédure analytique validée permettant l'analyse du tritium à bas niveau (quelques Bq.L $^{-1}$).

5|1| Flaconnage

Il existe différents types de flacons de comptage qui se distinguent les uns des autres par leur matériau constitutif. Les plus courants sont les flacons de verre et les flacons de polyéthylène. Les flacons de verre permettent d'observer visuellement les solutions mais leur mouvement propre est plus élevé que celui des flacons de polyéthylène. Cependant, les solvants organiques qui entrent dans la composition chimique des liquides scintillants diffusent à travers le polyéthylène, ce qui accélère considérablement la dégradation du mélange liquide scintillant – prise d'essai. Il existe d'autres types de flacons, notamment :

- des flacons de verre pauvres en ^{40}K , dont le mouvement propre est comparable à celui des flacons de polyéthylène.
- des flacons de polytétrafluoroéthylène (PTFE) ou des flacons de polyéthylène comportant une couche de PTFE sur la surface intérieure du flacon. La diffusion des solvants organiques est moins rapide à travers le PTFE qu'à travers le polyéthylène. Ces flacons peuvent être utilisés pour des comptages longs à très bas niveau (quelques Bq.L $^{-1}$).
- des flacons de PTFE-cuivre, dont les parois sont en PTFE et le bouchon en cuivre. Ces flacons présentent le mouvement propre le plus faible de tous, idéal pour les comptages à très bas niveau d'activité. Cependant, ils sont très coûteux, ce qui impose le nettoyage pour réutilisation de ces flacons.

5|2| Eau de référence

Une eau de référence est une eau où idéalement l'activité tritium est négligeable devant celle des échantillons à analyser. Dans ce but, il faut privilégier les eaux souterraines non contaminées par les eaux de surface et suffisamment anciennes pour que le tritium naturel (produit dans la haute atmosphère par interaction des neutrons du rayonnement solaire avec de l'azote) ait décru jusqu'à un niveau d'activité négligeable.

Dans le cas de l'eau de référence, les flacons de prélèvements sont des bouteilles en verre de 2 litres et des cubitainers en polyéthylène. Les bouteilles en verre et les cubitainers sont remplis d'argon quelques heures avant le remplissage par de l'eau de référence. Les cubitainers présentent l'avantage de ne pas laisser rentrer d'air lors des prélèvements d'eau de référence. Nous prenons ensuite les mêmes précautions que pour les prélèvements d'échantillons de très faible activité tritium. La date de prélèvement est notée sur chacun des flacons. A l'échelle de plusieurs mois, aucune contamination en tritium des eaux de forage stockées n'a pu être mise en évidence.

L'eau des Abatilles (région d'Arcachon), est l'eau de référence ($\sim 0,05$ Bq.L $^{-1}$) utilisée par de nombreux laboratoires pour la mesure du tritium dans le cadre de circuits intercomparaison organisés par la CETAMA. Certaines eaux de forage correspondent à des valeurs faibles ($\sim 0,2$ Bq.L $^{-1}$). Ces eaux de références sont analysées à l'issue d'une mesure par enrichissement électrolytique (Theodorsson, 1999 ; Plastino et al., 2007), suivie d'une analyse par scintillation liquide ou par spectrométrie de masse.

L'enrichissement électrolytique

Son principe est basé sur le phénomène suivant : dans certaines conditions et avec certains types d'électrodes, l'électrolyse d'une solution d'eau tritiée conduit à un dégagement de l'hydrogène tritié plus lent que celui de l'hydrogène. Il existe une grande variété de milieux électrolytiques, de matériaux constitutifs pour les électrodes, de géométries (dimensions du banc d'enrichissement électrolytique, nombre de cellules d'enrichissement comprenant un récipient étanche, une anode et une cathode). Cependant, les principes suivants doivent être respectés :

- Les volumes de départ doivent être importants, de l'ordre de quelques centaines de ml (en général de 250 mL à 500 mL). Le processus d'enrichissement conduit en effet à une forte diminution du volume de la solution et il est nécessaire de conserver en final un volume suffisant pour la mesure par scintillation liquide (soit quelques mL).
- La solution résiduelle est impossible à mesurer directement par scintillation liquide, car la concentration en électrolyte augmente de façon inversement proportionnelle à la réduction du volume. Il est donc nécessaire de procéder à une purification de cette solution, par neutralisation et distillation de la solution.
- Le processus dure en général plusieurs jours, car la densité d'énergie fournie à chaque cellule doit être suffisamment faible pour empêcher l'ébullition et l'évaporation de la solution. Les cellules doivent ainsi être continuellement refroidies. Elles sont généralement placées dans une enceinte réfrigérée. L'énergie est fournie par des alimentations stabilisées.
- Le processus d'enrichissement génère un mélange de gaz détonants ($\text{H}_2\text{O} \rightarrow \frac{1}{2} \text{O}_2 + \text{H}_2$). Le banc d'enrichissement doit être ainsi muni des sécurités adéquates : système d'évacuation haute des gaz détonants, détecteurs d'explosivité...
- L'enrichissement électrolytique associé à la scintillation liquide permet en moyenne d'abaisser la limite de détection d'un facteur 10 à 15 par rapport à la scintillation liquide utilisée seule. Grâce au double enrichissement, obtenu en réunissant toutes les solutions enrichies à l'issue d'un 1er enrichissement, dans une même cellule d'électrolyse pour un ultime enrichissement permettant de gagner un facteur 10 à 15 supplémentaire, il est possible d'atteindre des limites de détection voisines de 0,01 Bq.L $^{-1}$.

5|3| Etalon d'eau tritiée

Une source certifiée d'eau tritiée, quel que soit le fabricant, doit être utilisée pour la préparation de la série d'étalons de travail destinés à l'établissement de la courbe d'affaiblissement lumineux. Il est en général nécessaire de diluer la source certifiée pour préparer la série d'étalons de travail à affaiblissement lumineux variables.

A noter que l'activité de la source est fournie à une date définie. Il faut donc tenir compte de la décroissance radioactive à chaque utilisation de la source certifiée.

Soient $A(t)$ l'activité tritium en Bq de la source à l'instant t , $A(t_0)$ l'activité tritium en Bq de la source à l'instant t_0 et $T_{1/2}$ la période de demi-vie du tritium (12,312 ans soit 4497 ± 9 jours), l'activité $A(t)$ vaut :

$$A(t) = A(t_0) \times e^{-\ln(2) \times \frac{(t-t_0)}{T_{1/2}}}$$

Les solutions filles utilisées ultérieurement pour l'étalonnage des compteurs sont réalisées par dilution avec l'eau de référence employée pour déterminer le mouvement propre de l'appareil.

5|4| Etalonnage

La réalisation de la série d'étalons de travail à affaiblissements lumineux variables doit respecter un certain nombre de similitudes avec les échantillons mesurés :

- même quantité (masse ou volume) de mélange scintillant,
- même rapport entre la prise d'essai et le liquide scintillant,
- même type de liquide scintillant,
- valeur du paramètre d'affaiblissement lumineux des échantillons incluse dans la gamme d'étalonnage.

Un exemple de procédure d'étalonnage est fourni dans l'encadré suivant :

Préparation d'une courbe d'affaiblissement lumineux

a) Introduire une quantité (masse ou volume) similaire de solution étalon d'eau tritiée dans plusieurs flacons. L'activité ajoutée doit être suffisante pour une incertitude de comptage négligeable ($< 1\%$) pour tous les étalons. Les quantités (masses ou volumes) exactes ajoutées sont notées et seront utilisées pour déterminer l'activité de chaque étalon.

b) Compléter avec de l'eau de référence jusqu'à obtention de la prise d'essai voulue. Les quantités d'eau de référence ajoutées sont notées. Deux flacons contenant uniquement de l'eau de forage en quantité identique aux autres étalons seront utilisés pour la détermination du mouvement propre.

c) Ajouter dans chaque flacon la quantité voulue de liquide scintillant

d) Deux étalons de travail sont utilisés tels quels. Dans les autres étalons de travail des quantités croissantes, mais faibles devant la prise d'essai, d'agent d'affaiblissement lumineux sont ajoutées doivent rester faibles devant la prise d'essai. Avec par exemple du nitrométhane (CH_3NO_2) comme agent d'affaiblissement lumineux, 10g de liquide scintillant et 10 g de prise d'essai, nous pouvons par exemple réaliser les ajouts suivants :

N° étalon	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
V agent d'affaiblissement lumineux (μl)	0	0	≈ 5	≈ 10	≈ 20	≈ 40	≈ 60	≈ 100	≈ 150	≈ 200

Une série d'étalons de travail est réalisée pour chaque taille de flacon, type de liquide scintillant, masses respectives de liquide scintillant et de prise d'essai utilisés.

Réalisation de la courbe d'affaiblissement lumineux

Les diverses séries d'étalons de travail réalisées sont mesurées sur chacun des compteurs dans les mêmes fenêtres de comptage que celles utilisées pour les échantillons. Une courbe d'affaiblissement lumineux n'est valable que pour le compteur sur laquelle elle a été réalisée. Les activités des étalons étant relativement élevées, il n'est pas nécessaire d'avoir recours à des longues durées de comptage ; par exemple, des durées de comptage de 100 minutes sont largement suffisantes, même pour les étalons dont l'affaiblissement lumineux est le plus important.

La courbe d'affaiblissement lumineux ainsi déterminée reste valable, pour un compteur donné tant qu'aucune évolution notable du rendement de l'ensemble de comptage n'est détectée, soit par l'intermédiaire de la source de constance, soit par l'intermédiaire des IPA (compteurs Packard) ou des GLP ("Quantulus"). Dans ce cas, une nouvelle détermination de la courbe d'affaiblissement lumineux doit être réalisée.

Une solution alternative à l'utilisation d'une courbe d'affaiblissement lumineux est la réalisation d'ajouts dosés. Alors à chaque échantillon est associé au minimum un échantillon surchargé avec une activité de tritium connue afin de déterminer la quantité de tritium présente dans l'échantillon.

6 | Temps d'analyse

L'analyse du tritium dans les échantillons de l'environnement nécessite préalablement à la mesure de réaliser un nombre d'étapes plus ou moins grand en fonction de l'information recherchée. Cela se traduit par des durées de préparation, avant mesure, croissantes : de l'ordre de la journée pour le tritium total ou la fraction HTO mais augmentant jusqu'à trois jours pour le TOL et 6 jours pour le TOL-NE. Sachant que à chaque combustion correspond un lavage, qu'un banc de distillation comporte environ 5 postes, qu'un blanc de distillation est associé à chaque distillation et que les activités à mesurer sont environnementales, les temps de mesure pour 2 échantillons sera au minimum de 5 jours.

De plus, pour les applications environnementales, le signal obtenu lors de la mesure de l'activité des échantillons est souvent indiscernable de celui du bruit de fond. On introduit alors les notions de seuil de décision (SD) qui donne la probabilité qu'un radionucléide soit détecté alors qu'il est absent de l'échantillon et de limite de détection (LD) qui donne la probabilité qu'un radionucléide ne soit pas détecté alors qu'il est présent dans l'échantillon.

ISO 11929
$$SD = \frac{k}{t} \sqrt{2n_0 t}$$
;

Bayes
$$SD = \frac{k}{t} \sqrt{2(1+n_0 t)}$$
;

NF 60-802-1
$$SD = \frac{k}{t} (1 + \sqrt{1 + 2n_0 t})$$

7 | Limites de détection

Depuis la parution de la norme ISO 11929, le mode de calcul du seuil de détection (SD) est au cœur du débat avec trois relations utilisables en scintillation liquide en fonction du référentiel choisi (Figure 5 a-b).

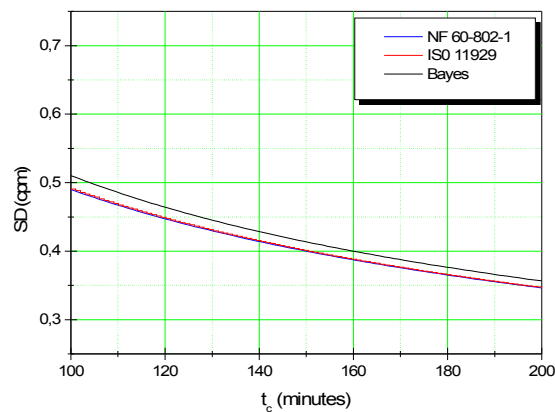
Dans les conditions usuelles d'un laboratoire, nous voyons que le SD varie de 0,45 à 0,48 cpm lors de l'utilisation d'un compteur Packard (5-a) et entre 0,060 et 0,065 cpm avec un compteur Wallac (5-b). Le seuil de décision étant par définition déterminé avec une incertitude de 100 % ($k = 2$), il est évident ici que la formule de calcul n'a pas d'impact sur la valeur obtenue. Ainsi, même si les notions de SD et LD sont prépondérantes dans le cadre de l'analyse à bas niveau, les critères pour réaliser une bonne analyse tritium sont plus nombreux :

- prélèvement,
- conservation,
- traitement
- mesure (étalonnage ou ajouts dosés, statistique de comptage)

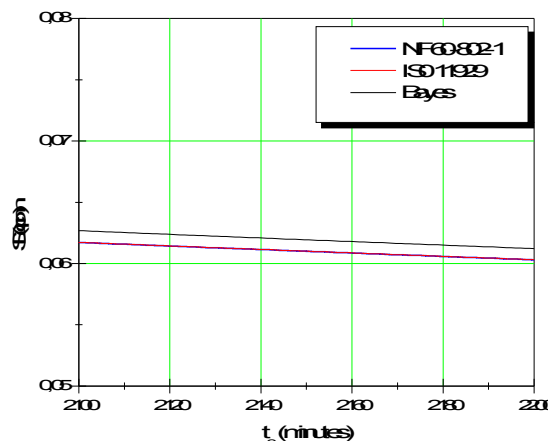
A chacune de ces étapes correspondent des contraintes inhérentes à la fois au niveau d'activité à quantifier, à l'outil analytique employé et à l'historique du laboratoire. Leur compréhension et leur maîtrise sont des éléments indispensables à la mise en place d'une procédure analytique validée, permettant l'analyse des niveaux de tritium environnemental.

Figure 5 : SD en cpm = $f(t)$ ($n_0 = 1 \text{ cpm}$) en bleu SD calculé d'après la formule issue de l'application de la norme 11929, en rouge application de la statistique Bayésienne et en noire celle de la norme NF 60-802-1

5-a : compteur Packard $t_c = 120 \text{ minutes}$ et $n_0 = 3 \text{ cpm}$



5-b : compteur Wallac $t_c = 2160 \text{ minutes}$ et $n_0 = 1 \text{ cpm}$



8 | Exercices d'intercomparaison tritium libre et tritium organique

Les objectifs des exercices d'intercomparaison sont différents en fonction de l'organisateur. Ils peuvent être élaborés dans un objectif de certification (IRSN) où en support des analystes afin de valider des méthodes (CETAMA ou PROCORAD par exemple).

Dans le premier cas, il s'agit de valider les compétences du laboratoire par un agrément certifiant de la qualité de ses résultats et l'autorisant à réaliser l'analyse en question dans le cadre de la surveillance environnementale. Ainsi l'IRSN organise sur une base biannuelle un circuit mesure du tritium dans l'eau ($\sim 20 \text{ Bq.L}^{-1}$), et prévoit en 2010 un premier circuit sur une matrice de lait.

La deuxième optique qui se situe en amont de la normalisation et/ou de la certification permet aux laboratoires participants de tester et valider leur méthode d'analyse sur des plages plus étendues en termes d'activité, de matrice... Il faut noter dans ce cadre, que le GT 31 de la CETAMA organise depuis quelques années des circuits tritium dans l'eau (10, 50 et 100 Bq.L^{-1}) et focalise depuis 2001 sur des intercomparaisons sur l'analyse du Tritium Organiquement Lié (TOL) dans des échantillons d'herbe prélevés dans l'environnement ($\sim 50 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Le groupe PROCORAD (Berard et al., 1998) organise aussi chaque année des intercomparaisons en radiotoxicologie avec des urines contaminées soit avec de l'eau tritiée ($> 500 \text{ Bq.L}^{-1}$) soit de la thymidine tritiée pour la mesure du TOL ($> 10000 \text{ Bq.L}^{-1}$).

Citons au niveau international des organismes comme l'AIEA (Autriche), l'USDOE (USA), l'AECL (Canada) ou encore le NIRS (Japon) qui organisent des circuits d'intercomparaison principalement dans l'eau, mais aussi mesure du TOL dans des matrices environnementales et dans un cas particulier sur des tissus humains (Hisamatsu et al., 1991)

9 | Bilan d'exercices d'intercomparaison tritium organisés par la CETAMA



9.1 | Circuit intercomparaison eau tritiée (2001-2002)

Un circuit intercomparaison sur des échantillons d'eau tritiée à différentes concentrations (10, 50 et 100 Bq.L^{-1} + fourniture d'une eau de référence des Abatilles) a été organisé en 2001-2002 par la CETAMA, avec une participation de 18 laboratoires français. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 1 pour les 3 niveaux de concentration et dans les figures 6 A-B pour 2 niveaux de concentrations analysés (10 et 100 Bq.L^{-1}). Ces résultats sont exprimés sous forme de moyenne générale et médiane, accompagnée des écarts types et intervalles de confiance associés exprimés sous forme de répétabilité (mesures faites par un même opérateur, sur un même instrument, avec la même méthode) et de reproductibilité (conditions de mesure changeantes).

Ces résultats montrent que :

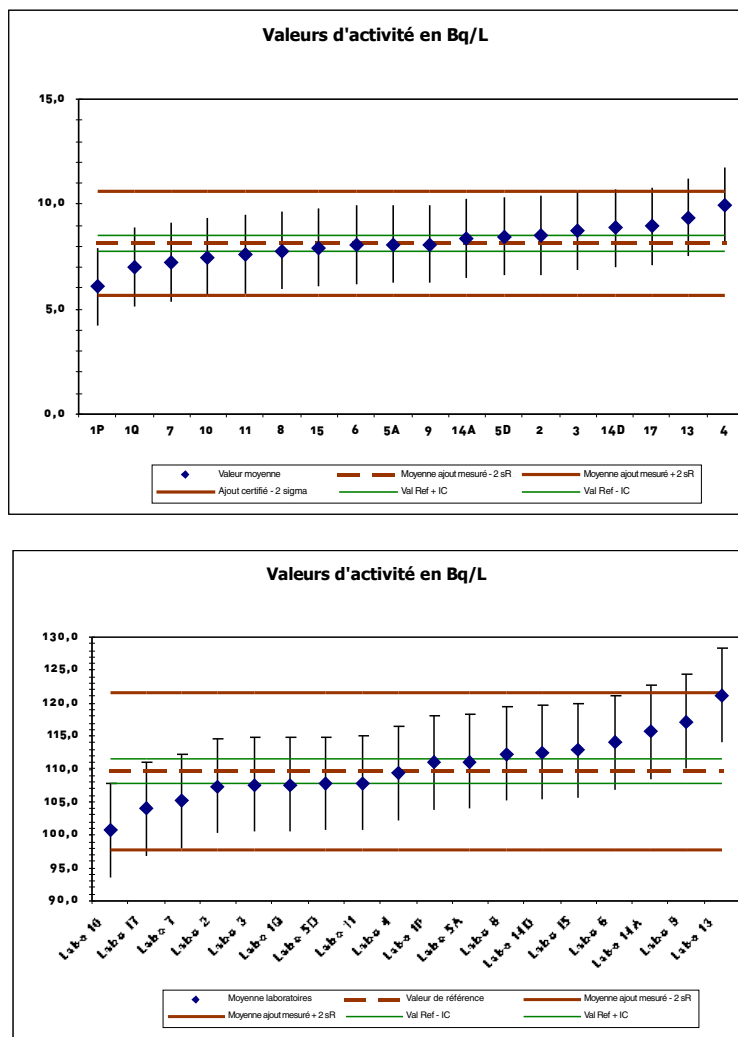
- i) pour chaque concentration, les écarts type de répétabilité sont inférieurs à ceux de reproductibilité ;
- ii) ces écarts augmentent de façon significative lorsque la concentration diminue ;
- iii) pour la concentration la plus faible de 10 Bq.L^{-1} , l'écart type de répétabilité étant de l'ordre de 11 %, ceci définit la limite de quantification de cette méthode (Curie, 1999).

En conclusion de ce circuit, la faible dispersion des résultats (écarts types $< 10\%$) sur les 18 laboratoires participants montre que la mesure du tritium est correctement maîtrisée dans ce type de matrice et à ces niveaux d'activité. Les caractéristiques du circuit en matière de répétabilité et de reproductibilité indiquent que le niveau de 10 Bq.L^{-1} est relativement proche de la limite de quantification des laboratoires, mais que cette valeur est très dépendante du temps de comptage.

Tableau 1. Synthèse des résultats du circuit intercomparaison tritium dans l'eau pour 3 échantillons de concentrations différentes

Echantillons tritium	10 Bq.L ⁻¹	50 Bq.L ⁻¹	100 Bq.L ⁻¹
Moyenne générale	8,1	47,3	110,3
Médiane	8,1	46,6	110,1
Ecart type répétabilité	0,9	2,1	3,6
Intervalle de Confiance de répétabilité (k=2)	1,9	4,2	7,1
Ecart type Reproductibilité	1,2	3,4	5,9
Intervalle de Confiance de Reproductibilité (k=2)	2,5	6,9	11,9
Données caractéristiques du circuit			
p essais	18	17	18
N résultats	87	82	88
N'	82	77,1	83,1
Valeurs relatives en %			
Ecart type répétabilité	11%	4%	3%
Intervalle de Confiance de répétabilité (k=2)	23%	9%	6%
Ecart type Reproductibilité	15%	7%	5%
Intervalle de Confiance de Reproductibilité (k=2)	30%	15%	11%

Figure 6. Représentation graphique des résultats d'analyse tritium des 18 participants pour 2 concentrations. A) 10 Bq.L⁻¹, B) 100 Bq.L⁻¹.



9|2| Circuit intercomparaison TOL (2001-2008)

Afin de valider la méthode CETAMA 384 « Dosage du tritium dans des matrices biologiques : cas du TOL », et de tester certaines étapes décrites dans la figure 1, plusieurs circuits interlaboratoires sur des échantillons biologiques prélevés dans l'environnement ont été organisés entre 2003 et 2009.

Un premier circuit a été organisé en 2001 (6 laboratoires participants) sur un échantillon d'herbe et lyophilisé par l'IRSN/LMRE ainsi qu'un échantillon de l'eau de lyophilisation associée. Le but de ce circuit était de tester d'une part la mesure du tritium libre dans l'eau de lyophilisation et d'autre part celle du tritium organiquement lié (TOL) dans l'herbe lyophilisée. Ces résultats ont montré une bonne homogénéité des résultats de mesure du tritium libre mais une forte dispersion des résultats concernant la mesure de TOL.

Un second circuit a donc été organisé en 2004-2006 (5 laboratoires participants) toujours sur un échantillon d'herbe lyophilisé par l'IRSN/LMRE, et plus focalisé sur la mesure du TOL.

Enfin un troisième circuit a été organisé en 2006-2008 (6 à 8 laboratoires participants) de nouveau sur un échantillon d'herbe. Dans ce circuit les laboratoires ont reçu 2 échantillons : l'un correspondant à l'herbe fraîche congelée et l'autre à cette même herbe lyophilisée par le laboratoire Subatech à Nantes. Le but de ce circuit était de tester l'étape de lyophilisation faite par chaque laboratoire sur un échantillon frais par rapport à la même étape réalisée par un seul laboratoire (Subatech).

Les figures 7 et 8 donnent 2 exemples de résultats obtenus d'une part avec les eaux de combustion (figure 7) et d'autre part sur la matière sèche (figure 8).

Figure 7 : Synthèse graphique des résultats d'eau de combustion en Bq.L^{-1} , aliquote sèche

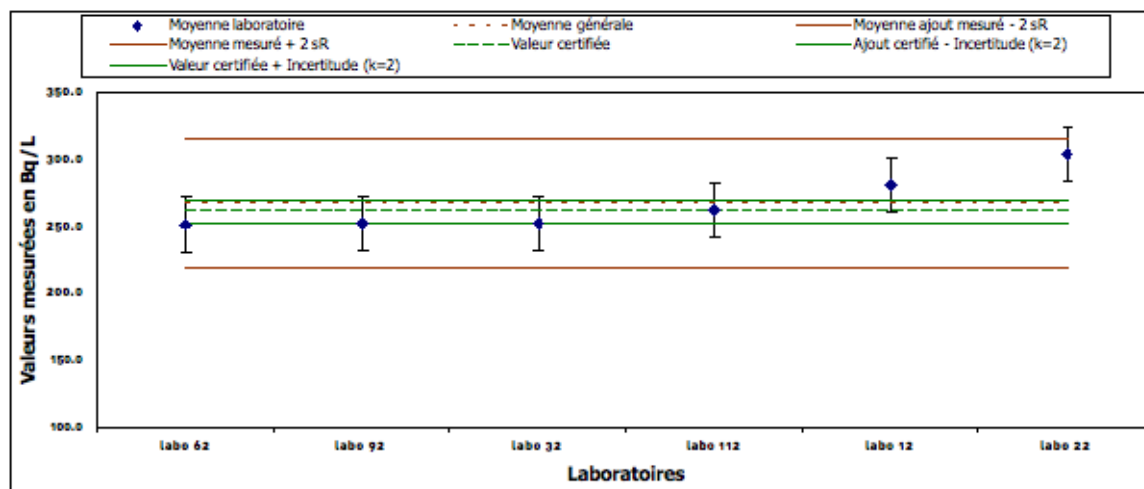
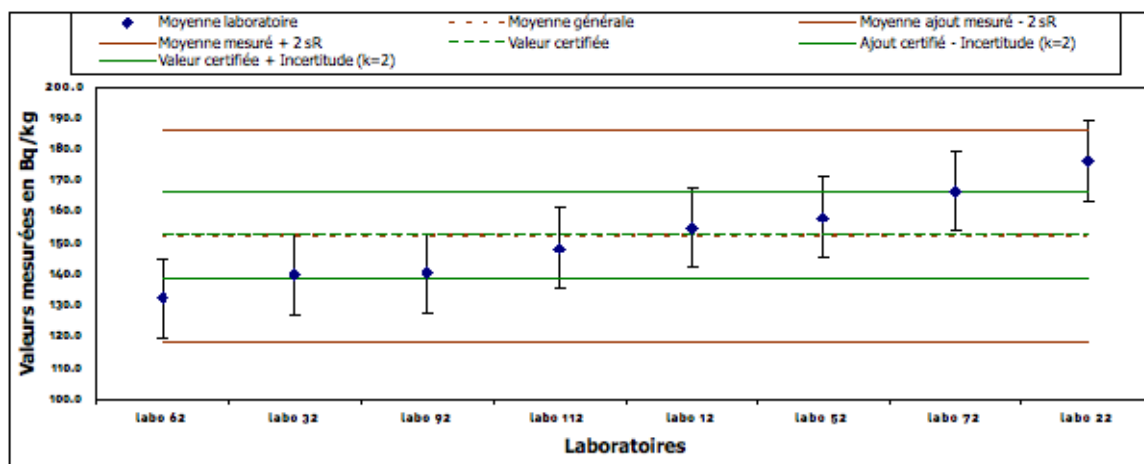


Figure 8 : Synthèse graphique des résultats sur aliquote sèche exprimés en Bq.kg^{-1} de matière sèche



Les résultats reportés lors de la dernière intercomparaison de la CETAMA permettent de conclure à un bon accord entre les valeurs obtenues par les différents laboratoires car ces dernières satisfont aux critères de reproductibilité. Ceux-ci soulignent les progrès réalisés par les laboratoires depuis le premier exercice même si l'écart type de reproductibilité (17 à 25%) et donc la limite de reproductibilité sont relativement élevés (50 à 78 %).

Dans ces conditions, il devient difficile de mettre en évidence de manière univoque l'impact potentiel des étapes de traitement de l'échantillon préalables à la mesure.

Perspectives : Une estimation de cet impact nécessite d'améliorer encore nos résultats en terme de dispersion. Dans ce but, un nouvel exercice va être mis en place en 2009. Son objectif principal sera de valider une procédure « CETAMA » pour l'analyse du TOL. En parallèle nous essaierons de valider notre procédure analytique par la vérification expérimentale de l'égalité mathématique $T_{\text{total}} = \text{HTO} + \text{TOL}$. Une fois cette première pierre de notre édifice consolidée, il sera alors possible de focaliser sur l'analyse du TOL-NE et valider une procédure robuste et simple de mise en œuvre à l'horizon 2015. Pour cela, il sera important de bien maîtriser l'étape d'élimination du TOL-E et donc de s'assurer de la non dégradation de la matrice. Dès lors, l'égalité $\text{TOL} = \text{TOL-E} + \text{TOL-NE}$ pourra être vérifiée expérimentalement et l'analyse du TOL-NE validée.

10 | Conclusions

Les normes (AFNOR, ISO) publiées à ce jour ne concernent que l'analyse du tritium dans des échantillons aqueux, et seule une méthode CETAMA aborde la mesure du TOL dans des échantillons environnementaux. Cette méthode, composée de nombreuses étapes, est testée depuis 2001 via des circuits intercomparaisons sur échantillons d'herbe prélevés dans l'environnement.

Concernant l'analyse du tritium dans les eaux de l'environnement, les points forts sont la fiabilité de cette analyse pour des niveaux de concentrations de l'ordre de quelques Bq.L^{-1} , avec possibilité de diminuer la limite de détection soit par enrichissement électrolytique, soit en utilisant la spectrométrie de masse. Les points faibles sont liés à des problèmes de bruit de fond, de conservation et de contamination des échantillons.

Concernant l'analyse du tritium organiquement lié (TOL), l'état des connaissances montre que l'analyse est fiable pour des valeurs de l'ordre de 50 Bq.kg^{-1} d'échantillon frais. Les points faibles sont des problèmes de contamination, de reproductibilité liés aux nombreuses étapes analytiques (combustion, lyophilisation...), de temps d'analyse (qq jours) et l'absence de matériaux de référence. Le point dur à ce jour est la séparation entre TOL-E et TOL-NE qui doit être validée expérimentalement.

- AFNOR –NF EN 60761-5 (2005) Équipements de surveillance en continu de la radioactivité dans les effluents gazeux - Partie 5 : exigences particulières aux moniteurs de tritium.
- AFNOR – NF M60-312. (1999) Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Air - Détermination par scintillation liquide de l'activité volumique du tritium atmosphérique prélevé par la technique de barbotage de l'air dans l'eau.
- AFNOR – NF M60-802-1. (2000) Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Eau. Partie 1 : mesurage de l'activité des émetteurs Bêta par scintillation liquide – Cas particulier du tritium.
- AFNOR – NF M60-802-3. (2002) Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Eau. Partie 3 : mesurage de l'activité des émetteurs Bêta par scintillation liquide – Cas particulier de la présence simultanée du tritium et du ^{14}C .
- Baglan N., Alanic G., Pointurier F. (2005) Tritium determination at trace level: which strategy to determine accurately HTO and OBT in environmental samples? *Fusion Science and Technology*. 48, 749-754.
- Belot Y., Roy M., Métivier H. (1996) Le tritium : de l'environnement à l'homme. EDP
- Cassette P. (2004) Mesures de radioactivité par scintillation liquide. Techniques de l'ingénieur. P3 analyse et caractérisation, P2552, 1-19.
- Berard P., Briot F., Cavadore D., Exmelin L., Fottorino R., Nguyen F. (1998) International radiobioassay quality controls. *Radiation Protection Dosimetry*. 79, 509-512.
- Clark, W.B., Jenkins, W.J., and Top, Z., 1976, Determination of tritium by mass spectrometric measurement of ^3He : *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*. 27, 515-522.
- Curie L.A. (1999) Detection and quantification limits : origins and historical overview. *Analytica Chimica Acta*. 391, 127-134.
- Guétat P., Douche C., Hubinois J.C. (2008) Le tritium et l'environnement : sources, mesures et transferts. *Radioprotection*. 43, 547-569.
- Hisamatsu S., Ohmura T., Takizawa Y., Katsumata T., Inoe Y., Itoh M., Ueno K., Sakanoue M. (1992) Tritium level in Japanese diet and human tissue. *J. Radioanal. Nucl. Chem*. 156, 89-102.
- Maubert H., di Pace L. (2008) Doses resulting from the inhalation of ITER generated tritiated dust. *Radioprotection*. 43, 13-22.
- ICRP Publication 30 (1978) Limits of intake of workers, Ann. ICRP 30.
- ISO/DIS 9698, ISO/TC147. (2009) Water quality – Determination of tritium activity concentration – Liquid scintillation counting method [revision of ISO 9698 :1989].
- Lebaron-Jacobs L., Garnier-Laplace J., Lopez B., Adam-Guillermin C., Dublineau I., Roussel-Debet S., Antonelli C., Fievet B., Bailly du Bois P., Masson M. (2009), Chapitre 30 Tritium, in Toxicologie nucléaire environnementale et humaine , Lavoisier (Paris).
- LNE-LNHB/CEA Table de radionucléides. (2006).
- Méthode CETAMA N° 380 (1999) Prélèvement, sélection, qualification et conservation d'une eau de référence tritium en vue de mesures tritium par scintillation liquide.
- Méthode CETAMA N° 384 (2001) Dosage du tritium dans des matrices biologiques.
- Métivier H., Hartmann P., Schneider T., Le Guen B., Foulquier L., Michelet M. (2009) Compte rendu des journées tritium organisées par la SFRP. Paris, 23-24 septembre 2009. *Radioprotection*. 44 N°4. A paraître.
- Plastino W., Chereji I., Cuna S., Kaihola L., de Felice P., Lupsa N., Balas G., Mirel V., Berdea P., Baciuc C. (2007) Tritium in water electrolytic enrichment and liquid scintillation counting. *Radiation Measurements*. 42, 68-73.
- Pointurier F., Baglan N., Alanic G., Chiappini R. (2003) Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France. *J. Env.Radioact*. 68, 171-189.
- Pointurier F., Baglan N., Alanic G. (2004) A method for the determination of low level organic bound tritium activities in the environmental samples. *Applied Radiation and Isotopes*. 61, 293-298.
- Surano K., Hudson G., Failor R., Sims J., Holland R., MacLean S., Garrison J. (1992) Helium-3 mass spectrometry for low-level tritium analysis of environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem*. 161, 443-453.
- Theodorsson P. (1999) A review of low-level tritium systems and sensitivity requirements. *Applied Radiation and Isotopes*. 50, 311-316

Impact sur l'Environnement

Sommaire

- 186** Le tritium et les êtres vivants.
Bioconcentration, Bioaccumulation,
Bioamplification ? (ANCCLI)
- 191** Rejets marins de tritium : Etude comparative
des sites de retraitement de La Hague et de
Sellafield (ACRO)
- 200** Le procédé mis en œuvre sur l'usine AREVA
NC de La Hague pour le traitement des
combustibles usés conduit à un rejet de tritium
libre (AREVA)
- 206** Gestion des rejets de tritium du site AREVA NC de
La Hague, impact et surveillance associés (AREVA)
- 211** Etude du transfert du tritium aux végétaux (CEA)
- 214** Apports de la surveillance du centre CEA-
Valduc sur la connaissance des transferts de
l'eau tritiée dans les différents compartiments
de l'environnement (CEA)
- 217** Apports de la modélisation sur la
compréhension des transferts du tritium dans
la biosphère et conséquences pratiques en cas
de rejet accidentel (CEA)
- 223** Tritium et convention OSPAR (IRSN)
- 227** Le tritium dans l'environnement : Point de vue
de l'IRSN sur les questions clés et sur les pistes
de recherche et de développement (IRSN)

Le tritium et les êtres vivants

Bioconcentration, Bioaccumulation, Bioamplification ?

Jean-Claude Amiard ¹

¹Directeur de Recherche au CNRS

Membre du Comité Scientifique de l'ANCCLI

Cet article s'inspire fortement d'une synthèse que nous avons faite pour le GRNC et qui a été publié dans les rapports de ce Groupe Pluraliste soit sous forme de résumé (Amiard, 2009a), soit sous forme développée (Amiard, 2009b).

1 | Le tritium dans les êtres vivants

Chez les êtres vivants, le tritium se présente sous deux formes principales, l'eau tritiée libre (HTO) et le tritium organiquement lié (OBT). Les échanges de HTO sont rapides, ceux de l'OBT nettement plus lents. Pour le tritium, dans la bioaccumulation, la voie trophique (nourriture solide) est prépondérante sur la voie directe externe (eau).

Le tritium est un isotope de l'hydrogène. Or, les êtres vivants sont constitués principalement de C, H, O, N, S, ... Il est présent donc dans toutes les molécules, ADN compris. Le tritium forme des liaisons covalentes avec le carbone qui sont très stables et dureront toute la vie de la molécule, c'est-à-dire peu pour les molécules impliquées dans le métabolisme énergétique et très longtemps dans des macromolécules comme l'ADN. Il forme aussi des liaisons avec notamment O, N et S mais qui sont plus labiles.

1|1 | Le tritium et l'ADN

L'ADN, macromolécule indispensable à la vie, est en interaction avec des molécules d'eau. L'action du rayonnement peut donc être directe par absorption de l'énergie par des composants de la double hélice, ou indirecte par leur réaction avec des espèces radiolytiques formées dans l'eau du voisinage (Douki et Cadet, 2008). Les réactions des radicaux de la radiolyse de l'eau avec les divers composants de l'ADN pris individuellement, dont les bases ou les sucres (désoxyriboses), ont été largement étudiées dans le passé. Aujourd'hui, les techniques permettent d'examiner les dommages causés à l'ADN lui-même dans son ensemble et dans son milieu cellulaire. Parmi les effets indirects des radicaux issus de la radiolyse de l'eau sur l'ADN, le radical OH[•] est le plus oxydant (Buxton, 2008).



Les dommages causés à l'ADN cellulaire peuvent provoquer des coupures simple brin (SSB) appelées coupures franches, des coupures double brin (DSB) ou des altérations de bases. La distribution de ces dommages au long de la molécule d'ADN dépend fortement de l'accessibilité des sites réactifs des sucres et des bases pour le radical OH[•]. Cette accessibilité dépend donc de la structure tridimensionnelle de la molécule d'ADN et en conséquence de la séquence de cet ADN ainsi que des facteurs environnementaux comme la concentration en ions métalliques.

Certaines radiations ionisantes peuvent provoquer des grappes de dommages, c'est-à-dire des lésions groupées dans des sites de dommages multiples (MDS, « multiple damages sites »). Ceci est par exemple le cas lorsque plusieurs bases proches sont modifiées, ou lors d'une coupure simple brin associée à une base oxydée, ou encore de deux coupures double brin, ou toutes autres combinaisons multiples de ces lésions localisées sur un ou sur les deux brins de l'ADN. Comme ce type de lésions multiples est bien moins efficacement réparé par les enzymes, elles conduisent finalement à la mutagenèse ou à la mort cellulaire programmée (apoptose).

Les effets directs de l'absorption du rayonnement ionisant sur l'ADN dépendent de la température, du TEL (transfert linéique d'énergie, en anglais LET « linear energy transfer »), ainsi que de la conformation de l'ADN (Sevilla et Bernhard, 2008). Dans le cas du tritium, le TEL est de 11,5 keV.μm⁻¹. Comme tout système irradié, l'ionisation initiale produit des électrons et des radicaux cations de l'ADN (ou trous) qui sont répartis en égales proportions entre le squelette phosphate-sucres de l'ADN et les bases. Les radicaux oxydés issus de la capture des trous sont surtout ceux de la guanine et dans une moindre portion de l'adénosine, alors que les électrons sont captés par la thymine ou la cytosine. La distribution particulière des radicaux est due au transfert de site en site, soit des électrons (Cyt[•], Thy[•], respectivement 29 et 27 %), soit des trous (Gua⁺, dans 35 % des cas pour les irradiations de faible TEL). Ceci s'explique par les potentiels d'ionisation (G<A<C, T) et des affinités électroniques des bases (C, T>>A>G). Le fait que la base guanine est fortement touchée explique que la base oxydée (8-oxo-7,8-dihydro-2'-déoxyguanosine, 8-oxdGuo) serve de biomarqueur de dommage à l'ADN (Vasseur *et al.*, 2008).

Deux mécanismes distincts de transfert de charge coexistent, l'un consiste en un saut de proche en proche, l'autre se produit en une seule étape (super-échange) entre deux bases séparées par une ou plusieurs bases de niveau plus élevé (ou « pont ») constituant une barrière thermodynamique, franchit par un effet tunnel.

1|2| Bioconcentration

La bioconcentration est le « processus qui traduit une accumulation de composés chimiques directement à partir de l'environnement physique (eau, air, sol) ». Le « facteur de concentration » est égal à la radioactivité dans l'organisme (Bq.kg^{-1}) divisée par la radioactivité dans l'eau (Bq.L^{-1}). Son obtention est uniquement expérimentale car seule une source physique est prise en compte (généralement eau mais aussi air, sédiment ...). Dans le cas du tritium, il y a équilibre avec l'eau donc théoriquement FC sera voisin de 1. Mais le FC ne représente pas la réalité car il néglige notamment les transferts trophiques.

1|3| Bioaccumulation

La bioaccumulation est le terme général qui désigne l'accumulation par les organismes aquatiques de substances chimiques directement à partir de l'eau et/ou à partir de nourriture contaminée. Dans la nature, l'accumulation par les organismes de polluants se fait directement à partir de l'eau et à partir de nourriture contaminée. Aussi l'obtention de l'estimation de la bioaccumulation par des mesures in situ sont nettement plus réalistes que celles obtenues à partir de contaminations expérimentales au laboratoire. La difficulté provient de la variabilité temporelle des concentrations de tritium dans les diverses composantes en particulier dans les eaux (douces, saumâtres ou marines) et de leurs évolutions non synchrones. La précision de l'évaluation du facteur de bioaccumulation dépendra de la qualité des quantifications (plus aisées lorsque les concentrations sont élevées, donc en sites pollués) et du nombre de mesures (un grand nombre de mesures affine la moyenne obtenue).

Les facteurs de bioaccumulation (FBA ou BAF) sont pour le tritium supérieur à 1. Les maximums observés sont dans le Canal de Bristol (estuaire de la Severn) : 20 000 pour les moules et pour les flets (cas particulier d'un rejet de molécules tritiées) (Williams *et al.*, 2001). A La Hague, les FBA chez les mollusques, crustacés et poissons sont compris entre 2 et 15 (EDF, 2005). Dans le delta du Rhône, nous estimons les FBA des moules compris entre 5 et 100 (Gontier *et al.*, 1992).

Stuart Jenkinson (Cefas) dans une récente communication orale à la SFRP (septembre 2009) rapporte des facteurs de concentration d'environ 500 à la fois chez les poissons et chez les mollusques vivant autour de Cardiff, avec un maximum de 6 000 et des facteurs avoisinant les 10 autour de Sellafield et de Hartlepool. Guillemette et Zerbib rapportent des faits similaires pour le site de La Hague dans ce volume.

1|4| Bioaccumulation ou « rémanence » ?

Certains auteurs constatent l'importance de cette bioaccumulation mais la qualifie de « rémanence ». Leur raisonnement est le suivant. A certaines périodes, l'environnement a été fortement contaminé notamment par les essais atomiques. Une partie de l'eau tritiée s'est biotransformée en tritium organiquement lié. Maintenant que la contamination de l'environnement est moindre, l'OBT que l'on retrouve dans les organismes est le résiduel de cette contamination antérieure et ceci expliquerait les rapports HTO/OBT supérieurs à 1 (voir ci-dessous). Si ce raisonnement est exact, il a deux conséquences. La première est que la période biologique de l'OBT dans les organismes est infiniment plus longue que celle estimée chez l'homme, sinon comment expliquer cette « rémanence ». La seconde conséquence est que d'un point de vue sanitaire qu'il y ait bioaccumulation ou « rémanence », les conséquences sont identiques. Il y a contamination interne par la forme la plus radiotoxique sur des molécules biologiques éventuellement très sensibles comme l'ADN.

1|5| Bioamplification

La bioamplification est « l'augmentation de la concentration dans les organismes avec leur niveau trophique ».

De nombreuses publications signalent que la voie nutritionnelle est prépondérante sur la voie directe (eau...).

Ainsi, le transfert du tritium organique est supérieur par voie alimentaire par rapport à la voie directe (Koranda et Martin, 1971). Chez la truite arc-en-ciel juvénile, la voie nutritionnelle est aussi prépondérante ; lorsque la contamination se fait par voie trophique, la quantité de tritium organique atteinte à l'équilibre chez la truite arc-en-ciel juvénile correspond à 80 % de la quantité de tritium ingérée (Rodgers, 1986).

Plusieurs expériences semblent indiquer dans les années 1970 une bioamplification potentielle du tritium dans les chaînes trophiques. Ainsi, Kirchmann *et al.* (1971) constatent que lorsque des prairies sont contaminées par du tritium, l'incorporation du tritium dans la matière organique du lait est dix fois plus élevée que lorsque la voie de contamination est l'eau d'abreuvement. Les vitesses d'incorporation sont aussi différentes : rapide dans le cas de la voie directe, plus lente par l'intermédiaire de l'herbe, le maximum est obtenu dans ce cas en 4 jours.

Dans une expérience où des veaux et des porcs reçoivent du tritium par diverses voies (injections intra péritonéales et ingestions d'eau tritiée, de lait, de poudre de lait et de pommes de terre), Kirchmann *et al.* (1977) constatent la grande influence de la voie de contamination sur la bioaccumulation du tritium. Ainsi, par exemple, l'incorporation est 5,6 fois plus forte chez les porcs et 15 fois plus forte chez les veaux lorsque la voie est la poudre de lait comparée à la voie eau, 15,6 fois plus forte chez les porcs lorsque la voie d'alimentation est la pomme de terre. Toutefois, le tritium ne semble pas s'accumuler préférentiellement dans l'ADN.

Dans une expérience, des vaches sont nourries avec du foin contenant du tritium sous forme de tritium lié organiquement (OBT) pendant 4 semaines. 450 jours plus tard (soit deux périodes de lactation), l'activité spécifique du tritium à l'équilibre n'était que de 58, 10 et 11 % respectivement dans la caséine, le lactose et l'eau du lait de l'activité trouvée dans les lipides du lait (Van Den Hoek *et al.*, 1985). 97 % du tritium trouvé dans la caséine et les lipides est du tritium lié organiquement. Dans le lait 50 % du tritium est lié aux formes organiques et 50 % à l'eau. La demi-vie du tritium lié à la caséine et aux graisses est d'environ 3 mois.

Chez des rats, le tritium fourni avec l'eau de boisson associé à des molécules organiques (leucine, lysine, glucose, glucosamine, thymidine et uridine) se bioaccumule quatre à neuf fois plus que le tritium lié à l'eau. La contribution à la dose d'irradiation du tritium lié à la matière organique est deux fois plus élevée que celle due à l'eau tritiée (Takeda, 1991).

Le transfert du tritium dans une chaîne trophique marine : diatomées (*Chaetoceros gracilis*) - artémies (*Artemia salina*) - poissons (*Oryzias latipes*) est nettement plus important lorsque la source du tritium est la nourriture, que l'eau. Une partie non négligeable du tritium est incorporé dans l'ADN des artémies (Komatsu *et al.*, 1981).

Dans l'estuaire de la Severn et le canal de Bristol, les différences de concentration en tritium des diverses espèces étudiées semblent liées aux régimes alimentaires (McCubbin *et al.*, 2001). Ainsi, les poissons « mangeurs de sédiment » (flet et sole) se contaminent nettement plus que le sprat, poisson pélagique planctonophage. Aussi, une bioamplification ne peut être exclue avec ces résultats.

1|6| La discrimination isotopique ou l'enrichissement isotopique

Elle semble évidente en raison d'une différence de masse énorme (facteur 3) et de l'encombrement plus importante du tritium par rapport à l'hydrogène. Alpen (1990) indique que cette discrimination devrait se faire sentir en particulier au niveau des cinétiques.

Pour tous les isotopes, le comportement physique est modifié dans les phénomènes d'évaporation, de condensation... Par exemple les molécules $H_2^{18}O$ et HDO s'évaporent moins vite que $H_2^{16}O$, ce qui fait que l'eau restante s'en trouve enrichie.

Il est généralement admis que les réactions enzymatiques incorporent moins vite le tritium que l'hydrogène mais qu'en revanche les liaisons du tritium avec le carbone sont plus fortes que celles de l'hydrogène avec le carbone.

D'un point de vue chimique les différences de fractionnement dépendent par exemple du substituant sur le groupe amino (Szydlowski et Wawer, 1986).

Mais la discrimination se fait-elle toujours dans le même sens ?

L'incorporation du tritium dans les molécules biologiques est-elle identique à celle de l'hydrogène ?

Une fois le tritium lié à une molécule, celle-ci a-t-elle une destinée identique à une molécule « normale » ?

Chez les organismes il faudrait connaître les forces de liaison entre C-H et C-T, entre N-H et N-T, ... La littérature est pauvre dans ce domaine !

1|7| Le rapport isotopique (RI) T/H

Le rapport isotopique est extrêmement important. Pour 10 Bq.L^{-1} , $RI = 1T / 10^{16}H$.

Quelle est la sensibilité de ce rapport disproportionné ?

Par ailleurs le RI est très variable dans l'environnement (contamination discontinue) mais aussi dans les organismes (échanges très rapides de HTO).

De plus le RI dans les organismes ne peut être assimilé à l'OBT mais au tritium total.

2| La spéciation chimique du tritium

C'est un problème ancien, commun à tous les polluants. La spéciation peut être abordée à divers niveaux. Au niveau moléculaire, chaque molécule, selon les liaisons, sera un cas particulier. Du point de vue opérationnel, la distinction HTO et OBT est une bonne avancée.

2|1| Le tritium libre (HTO) et le tritium organiquement lié (OBT)

La différence est grande pour ces deux formes notamment pour la bioaccumulation, la période biologique, la microdistribution ou l'effet biologique.

Ainsi, dans le cas des périodes biologiques, chez la truite arc-en-ciel juvénile contaminée chroniquement, si la contamination se fait directement par l'eau environnante, la période biologique est d'environ 10 jours et lorsque la contamination se fait par voie trophique, la période biologique est plus longue et est comprise entre 18 et 32 jours (Rodgers, 1986).

Chez le rat avec l'eau tritiée, 97% du tritium transféré à l'organisme a une demi-vie de 10 jours et 3 % une demi-vie de 40 jours, alors que pour la forme OBT, les demi-vies sont de 10 jours pour 70 % du tritium transféré dans l'organisme et 100 jours pour 30 % de celui-ci (Hodson *et al.*, 2005).

Chez l'homme les demi-vies de l'OBT dans le cartilage des côtes et le sternum ont été estimées respectivement à 57 ans et à moins de 6 ans (Hisamatsu *et al.*, 1992).

2|2| Le rapport OBT / HTO

Dans la littérature, ce rapport est presque toujours supérieur à 1 chez les organismes, les aliments et l'homme. Ainsi, chez les poissons du Rhône, le rapport du tritium organique dans les tissus sur le tritium dans l'eau tritiée ($[OBT]_{\text{poisson}} / [HTO]_{\text{eau du fleuve}}$) varie de 3 à 15 (Pally *et al.*, 1993). Dans les organismes marins, les valeurs de tritium organiquement lié (OBT) sont généralement supérieures à celles de l'eau tritiée (HTO) (Masson *et al.*, 2004 et 2005) (Tableau 1).

Tableau 1. Activités moyennes en HTO et OBT (Bq.L^{-1}) dans les algues, mollusques et poissons dans l'environnement du CNPE de Gravelines (d'après Masson *et al.*, 2004 et 2005). n = nombre d'échantillons

	HTO	OBT
Algues	$3,2 \pm 1,2$ (n = 7)	$5,7 \pm 1,3$ (n = 7)
Mollusques	$2,8 \pm 0,4$ (n = 3)	$7,1 \pm 1,2$ (n = 3)
Poissons	$3,2 \pm 0,3$ (n = 3)	$4,7 \pm 0,5$ (n = 3)

Dans les sédiments de l'estuaire de la Loire, les formes OBT (en moyenne $20,55 \text{ Bq.L}^{-1}$) dominent nettement les formes libres (HTO) (en moyenne $7,6 \text{ Bq.L}^{-1}$) (Siclet, 2001).

Chez la truite arc-en-ciel juvénile contaminée chroniquement, le rapport OBT/HTO est nettement supérieur lorsque la contamination se fait par voie trophique, que par contamination directe par l'eau (Rodgers, 1986).

Dans les aliments, le rapport OBT/HTO était de 3 à New York (Bogen et Wedford, 1976). Le rapport des concentrations de tritium entre le sang (tritium total) et l'urine (HTO) est un bon indicateur de la contamination interne des sujets exposés. Il est voisin de 6 chez les italiens (Belloni *et al.*, 1983) et d'environ 3 chez les autrichiens (Irlwerck et Teherani, 1975), démontrant une rémanence du tritium organique.

De même, Stuart Jenkinson (Cefas) dans une récente communication orale à la SFRP (disponible sur internet : <http://www.sfrp.asso.fr/>), signale que chez les organismes marins la forme OBT est largement dominante. Ainsi, elle est de 90 à 95 % autour de Cardiff, de 80 à 90 % autour de Sellafield et d'environ 70 % chez les moules et d'environ 90 % chez les bigorneaux autour de Hartlepool.

Boyer (2009) a réalisé récemment des études expérimentales de l'incorporation du tritium atmosphérique sous forme d'eau tritiée sous des conditions climatiques contrôlées pendant des périodes relativement longues (jusqu'à 62 jours). La proportion du tritium incorporé sous forme d'OBT total dans les laitues serait supérieure à 1 dans certaines conditions. Le rapport entre le tritium de la vapeur atmosphérique et l'OBT des plants serait d'environ 5. La période de plus forte intégration du tritium sous forme organique correspond à la phase de croissance exponentielle des végétaux. Ces expériences indiquent qu'un phénomène de bioaccumulation locale du tritium dans la matière organique pourrait se manifester dans des conditions particulières d'exposition. L'auteur n'exclut toutefois pas l'hypothèse d'un artefact expérimental. Ceci est à rapprocher des phénomènes de « rémanence » signalés chez divers végétaux pour le tritium.

3| Le cas des bactéries

Qu'en est-il de la bioaccumulation du tritium dans les bactéries et de sa transformation en OBT ? Chez des bactéries (*Rhodospseudomonas spheroides*) contaminées par de l'eau tritiée, lorsque les cellules sont en croissance à la lumière, le tritium libre ne représente que 14,3 % tandis que le tritium non-échangeable est lié aux lipides (18,4 %), aux acides nucléiques (24,8 %) et aux protéines (42,5 %) (Inomata, 1983).

4 | Les effets néfastes du tritium chez les êtres vivants

Nous n'avons relevé aucune étude d'écotoxicité du tritium chez les végétaux. En revanche, parmi un nombre très restreint d'études chez les animaux, nous relevons chez les organismes aquatiques des valeurs seuil particulièrement faibles. Ainsi, une dose d'eau tritiée estimée à $0,07 \mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ a un impact négatif sur la survie et le développement des larves de bernacles (Abbott et Mix, 1979). Chez la moule, *Mytilus edulis* (aux stades œuf et adulte), les dommages à l'ADN sont dose-dépendants à partir de $12 \mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$, et les conséquences cytogénétiques non dose-dépendants sont significatives dès $1,3 \mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ (Jha *et al.*, 2005 ; 2006). Hagger *et al.* (2005) rapportent que dès $1,7 \text{ mGy}\cdot\text{h}^{-1}$, certaines anomalies du développement des larves apparaissent chez ces animaux après 23 heures d'exposition à HTO.

Ces valeurs remettent en cause la valeur de $10 \mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ généralement admise comme critère de protection pour les écosystèmes.

Hu *et al.* (2002) montrent que le tritium incorporé à de la thymidine a un impact inhibiteur important sur la synthèse de l'ADN, tout comme sur la prolifération cellulaire et la morphologie des cellules. Ceci avait déjà été signalé par Streffer *et al.* (1977). Saintigny *et al.* (2008) soulignent que de faibles irradiations de tritium peuvent induire une instabilité génomique de cellules mammaliennes.

5 | Le phénomène de proximité (« bystander ») dans le cas du tritium

Ce phénomène de proximité (ou de voisinage), qui consiste en une réponse généralement néfaste des cellules voisines de celle qui a subi l'irradiation existe dans le cas du tritium. Ainsi Geraschchenko et Howell (2004 ; 2005) constatent que les cellules voisines de celles qui ont été marquées par le tritium prolifèrent. Persaud *et al.* (2007) signalent que les cellules voisines de celles ayant reçu une faible irradiation (transfert linéique d'énergie faible) mutent.

6 | Conclusions : les problèmes liés à la présence du tritium dans l'environnement

Y a-t-il une discrimination entre les diverses formes chimiques de tritium ?

La réponse semble affirmative en particulier pour tout le tritium lié à la matière organique qui aura une distribution, des vitesses d'accumulation et d'élimination différentes. Les résultats de la contamination des organismes marins dans l'estuaire de la Severn sont éloquentes (molécules marquées) à ce sujet.

Comment expliquer que les formes organiques prédominent dans l'environnement alors que les rejets sont essentiellement de l'eau tritiée ?

Plusieurs explications ont été avancées. Jean-Baptiste *et al.* (2007) estiment que ce phénomène est dû à la présence, dans le Rhône, de particules issues de l'industrie des peintures luminescentes. Turner *et al.* (2009) évoquent la possibilité de formation de composés organiques en milieu marin. Rappelons que ce phénomène a été observé pour le mercure qui était biotransformé en méthylmercure. Les rares travaux sur l'incorporation du tritium par les bactéries semblent conforter l'hypothèse d'une biotransformation de l'eau tritiée en tritium organiquement lié.

Y a-t-il un phénomène de bioamplification pour le tritium ? C'est à dire une bioaccumulation accrue à chaque niveau trophique.

Les premières études dans les années 1970 – 1980 semblaient très claires à ce sujet : le tritium peut se bioamplifier dans certaines chaînes trophiques. Depuis les travaux sur ce sujet sont inexistantes. La conjonction de la prépondérance de la voie nutritionnelle dans la bioaccumulation du tritium et des vitesses très différentes d'élimination (périodes biologiques) des diverses formes chimiques de tritium rend parfaitement

plausible le phénomène de bioamplification dans des sites chroniquement pollués par ce radionucléide. Les paramètres responsables de la bioamplification sont connus (Norstrom et Letcher, 1997) et de nombreuses molécules biologiques pouvant lier le tritium répondent à ces critères.

Les limites des connaissances en matière

de transfert du tritium dans l'environnement : les difficultés de la mesure.

Le tritium est un bêta pur. La spéciation (HTO, OBT, ...) a une grande importance, mais elle est délicate à obtenir.

Au bilan, nous ne pouvons que constater un manque de connaissances assez criant sur le comportement des formes organiques du tritium, avec très peu d'études et la plupart étant anciennes.

Des connaissances supplémentaires sont indispensables sur i) la nature de ces composés organiques, ii) sur leur spéciation physico-chimique dans l'environnement et iii) leur réelle capacité de bioamplification dans les chaînes trophiques.

7 | Recommandations

Il est nécessaire que la détection et la quantification des diverses formes chimiques du tritium soient maîtrisées et que des exercices d'intercalibration entre les laboratoires soient effectués.

Il est nécessaire d'initier des mesures in situ des concentrations en tritium des organismes vivant dans l'écosystème représentatif des divers niveaux trophiques dans des sites chroniquement pollués par ce radionucléide.

Il est nécessaire de réaliser des études sur les capacités de bioaccumulation et de biotransformation du tritium par les bactéries des sols et des sédiments.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Abbott D.T., Mix M.C. (1979). Radiation effects of tritiated seawater on development of the Goose barnacle, *Pollicipes polymerus*. *Health Phys.*, 36, 283–287.
- Alpen E.L. (1990). *Radiation Biophysics*. Academic Press, New York, 517 p.
- Amiard J.-C. (2009a). Le tritium dans l'environnement. Quelques réflexions et questions d'actualité. In : GRNC, Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses présentées dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement d'Areva-NC La Hague, quatrième avis du GRNC, année 2006. Rapport de synthèse de l'année 2006, 122-125.
- Amiard J.-C. (2009b). Le tritium, sa dispersion dans l'environnement et ses effets sur les êtres vivants. In : GRNC, Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses présentée dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement d'Areva-NC La Hague, quatrième avis du GRNC. Rapport détaillé de l'année 2006, 297-314.
- Belloni P., Clemente G.F., di Pietro S., Ingrao G. (1983). Tritium levels in blood and urine samples of the members of the Italian general population and some exposed subjects. *Radiat. Prot. Dos.*, 4, 109-113.
- Bogen D.C., Welford G.A. (1976). "Fallout tritium" distribution in the environment. *Health Phys.*, 30, 203-208.
- Boyer C (2009). Etude des transferts du tritium atmosphérique chez la laitue : étude cinétique, état d'équilibre et intégration du tritium sous forme organique lors d'une exposition continue. *Thèse de l'Université de Besançon*, 30 novembre 2009, 309 p.
- Buxton G.V. (2008). An overview of the radiation chemistry of liquids. In: Spothem-Maurizot M., Mostafavi M., Douki T., Belloni J., eds, *Radiation Chemistry From basics to application in material and life sciences*. EDP Sciences/L'actualité Chimique, Chapter 1, 3-16.

- Douki T., Cadet J. (2008).** Radiation-induced damage to DNA: from model compounds to cell. In: Spotheim-Maurizot M., Mostafavi M., Douki T., Belloni J., eds, *Radiation Chemistry From basics to application in material and life sciences*. EDP Sciences/L'actualité Chimique, Chapter 12, 177-189.
- EDF 2005.** Bilan radio-écologique de l'environnement terrestre et marin du CNPE de Flamanville (1973 – 2003), référence : ELIER/05 B BPE, 2005.
- Geraschchenko B.I., Howell R.W. (2004).** Proliferative response of bystander cells adjacent to cells with incorporated radioactivity. *Cytometry*, 60A, 155-164.
- Geraschchenko B.I., Howell R.W. (2005).** Bystander cell proliferation is modulated by the number of adjacent cells that were exposed to ionizing radiation. *Cytometry*, 66A, 62-70.
- Gontier G., Grenz C., Calmet D., Sacher M. (1992).** The contribution of *Mytilus* sp. in radionuclide transfer between water column and sediment in the estuarine and delta systems of the Rhône river. *Estuar. Coast. Shelf Sci.*, 34, 593-601
- Hagger J.A., Atienzar F.A., Jha A.N. (2005).** Genotoxic, cytotoxic, developmental and survival effects of tritiated water in the early life stages of the marine mollusc, *Mytilus edulis*. *Aquatic Toxicol.*, 74, 205-217.
- Hisamatsu S., Ohimura T., Takizawa Y., Katsumata T., Inoue Y., Itoh M., Ueno K., Sakanoue M. (1992).** Tritium level in Jaanese diet and human tissue. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 156, 89-102.
- Hodgson A., Scott J.E., Fell T.P., Harrison J.D. (2005).** Radiation doses from the consumption of Cardiff Bay flounder containing organically bound tritium (OBT). *J. Radiol. Prot.*, 25, 149-159.
- Hu V.W., Black G.E., Torres-Duarte A., Abramson F.P. (2002).** ³H-thymidine is a defective tool with which to measures rates of DNA synthesis. *FASEB J.*, 1456-1457. DOI: 10.1096/fj.02-0142fje.
- Inomata T. (1983).** Accumulation and lethal effect of tritium (tritiated water) in *Rhodospseudomonas spheroides* under light-anaerobic and dark-aerobic conditions. *Radiat. Environ. Biophys.*, 21, 281-294.
- Irlweck K., Teherani D.K. (1975).** Tritium concentration in urine and blood of Austrian residents. *Health Phys.*, 30, 407-409.
- Jean-Baptiste P., Baumier D., Fourné E., Dapoigny A., Clavel B. (2007).** The distribution of tritium in the terrestrial and aquatic environments of the Creys-Malville nuclear power plant (2002-2005). *J. Environ. Radioact.*, 94, 107-118.
- Jha A.N., Dogra Y., Turner A., Millward G.E. (2005).** Impact of low doses of tritium on the marine mussel, *Mytilus edulis*: Genotoxic effects and tissue-specific bioconcentration. *Mut. Res.*, 586, 47-57.
- Jha A.N., Dogra Y., Turner A., Millward G.E. (2006).** Are low doses of tritium genotoxic to *Mytilus edulis*? *Mar. Environ. Res.*, 62, S297-S300
- Kirchmann R., Charles P., Van Bruwaene R., Remy J., Koch G., Van Den Hoek J. (1977).** Distribution in the different organs of calves and pigs after ingestion of various tritiated feeds. *Curr. Top. Radiat. Res. Q.*, 12, 291-312.
- Kirchmann R., Van Den Hoek J., Lafontaine A. (1971).** Transfert et incorporation du tritium dans les constituants de l'herbe et du lait, en conditions naturelles. *Health Physics*, 21, 61-66.
- Komatsu K., Higushi M., Sakka M. (1981).** Accumulation of tritium in aquatic organisms through a food chain with three trophic levels. *J. Radiat. Res.*, 22, 226-241.
- Koranda J.J., Martin J.R. (1972).** Movement of tritium in ecological systems. *Nucl. Sci. Abstr.*, 26, 9485.
- Masson M., Siclet F., Fournier M., Maigret A., Gontier G., Bailly du Bois P. (2004).** Tritium along the French coast of the English Channel. *Radioprotection*, 39 (suppl. 1), 6 p.
- Masson M., Siclet F., Fournier M., Maigret A., Gontier G., Bailly du Bois P. (2005).** Tritium along the French coast of the English Channel. *Radioprotection*, 40, S621-S627.
- McCubbin D., Leonard K.S., Bailey T.A., Williams J., Tossell P. (2001).** Incorporation of organic tritium (³H) by marine organisms and sediment in the Severn estuary/Bristol Channel (UK). *Mar. Pollut. Bull.*, 42, 852-863.
- Norstrom R.J., Letcher R.J. (1997).** Role of biotransformation in bio-concentration and bioaccumulation. In: Sijm D., de Bruin J., de Voogt P., de Wolf P. (eds), *Biotransformation in environmental risk assessment*. Society of Environmental Toxicology and Chemistry (SETAC), Bruxelles, Europe Workshop, 103-113.
- Pally M., Barre A., Foulquier L. (1993).** Tritium associé à la matière organique des sédiments, végétaux et poissons des principaux cours d'eau français. *Verh. Int. Ver. Limnol.*, 25, 285-289.
- Persaud R., Zhou H., Baker S.E., Hei T.K., Hall E.J. (2005).** Assessment of low linear energy transfer radiation-induced bystander mutagenesis in a three-dimensional culture model. *Cancer Res.*, 65, 9876-9882.
- Persaud R., Zhou H., Hei T.K., Hall E.J. (2007).** Demonstration of a radiation-induced bystander effect for low dose low LET β -particles. *Radiat. Environ. Biophys.*, 46, 395-400.
- Rodgers D. (1986).** Tritium dynamics in juvenile rainbow trout, *Salmo gairdneri*. *Health Phys.*, 50, 89-98.
- Saintigny Y., Roche S., Meynard D., Lopez B.S. (2008).** Homologous Recombination is Involved in the Repair Response of Mammalian Cells to Low Doses of Tritium. *Rad. Res.*, 170, 172-183.
- Sevilla M., Bernhard W.A. (2008).** Mechanisms of direct radiation damage to DNA. In: Spotheim-Maurizot M., Mostafavi M., Douki T., Belloni J., eds, *Radiation Chemistry From basics to application in material and life sciences*. EDP Sciences/L'actualité Chimique, Chapter 13, 191-201.
- Siclet F. (2001).** Transfert jusqu'à l'estuaire des radionucléides rejetés par les CNPE du bassin de la Loire. *Hydroécol Appl.*, 13, 43-83.
- Streffer C., Elias S., Van Beuningen D. (1977).** Comparative effects of tritiated water and thymidine on the preimplanted mouse embryo during cultivation in vitro. *Curr. Top. Radiat. Res. Quart.*, 12, 182-193.
- Szydlowski J., Wawer A. (1986).** Tritium isotope fractionation between ammonia, methylamine, dimethylamine and n-butane thiol. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 99, 31 - 38
- Takeda H. (1991).** Incorporation and distribution of tritium in rats after chronic exposure to various tritiated compounds. *Int. J. Radiat. Biol.*, 59, 843-853.
- Turner A., Millward G.E., Stemp E. (2009).** Distribution of tritium in estuarine waters : the role of organic matter. *J. Environ. Radioact.*, 100, 890-895.
- Vasseur P., Cossu-Leguille C., Atienzar F., Rodius F., Lemièrre S. (2008).** Marqueurs de génotoxicité et effets in situ, individuels et populationnels. In : *Les biomarqueurs dans l'évaluation de l'état écologique des milieux aquatiques*. Amiard J.-C. & Amiard-Triquet C., eds. Lavoisier, Tec&Doc, Paris, 295-330.
- Van Den Hoek J., Ten Have M.H.J., Gerber G.B., Kirchmann R. (1985).** The transfer of tritium-labeled organic material from grass into cow's milk. *Radiat. Res.*, 103, 105-113.
- Williams J.L., Russ R.M., McCubbin D., Knowles J.F. (2001).** An overview of tritium behaviour in the Severn Estuary (UK). *J. Radiol. Prot.*, 21, 337-344.

Rejets marins de tritium : Etude comparative des sites de retraitement de La Hague et de Sellafield

André Guillemette¹, Jean-Claude Zerbib²

¹ Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest (ACRO)

² Groupe Radioécologie Nord-Cotentin

AVERTISSEMENT

Utilisation de données environnementales acquises lors de la surveillance réglementaire des installations nucléaires dans une étude radio écologique.

Dans certaines contributions au livre blanc de l'ASN sur le tritium, comme lors des dernières réunions des GT tritium, il nous est reproché de manière récurrente et appuyée par certains interlocuteurs institutionnels et les représentants des exploitants, d'utiliser dans un article traitant de radio écologie des données essentiellement issues de la surveillance réglementaire des installations nucléaires, et non des données destinées à des études scientifiques.

L'utilisation des mesures de la surveillance réglementaire dans un article traitant de radio écologie n'est pas un procédé nouveau. Ces données ont été la base essentielle des travaux du Groupe Radioécologie Nord Cotentin¹. Lors des travaux du GRNC, les exploitants ont pris toute leur place dans la collation des données et leur exploitation. Entre 1997 et 1999, les représentants d'AREVA NC et d'EDF notamment n'ont exprimé aucun désaccord sur la construction des travaux du GRNC, comme de sa conclusion.

Le Groupe d'Étude Pluraliste (GEP), chargé de dresser un état des lieux autour des anciennes mines d'uranium, travaille actuellement lui aussi à partir de données majoritairement issues de la surveillance réglementaire. A notre connaissance, l'exploitant AREVA NC, partie prenante des GEP, n'a pas remis en cause ses propres mesures issues de la surveillance réglementaire imposée par arrêtés préfectoraux.

Les travaux du COMARE pour le site de Sellafield ont été menés à partir de données similaires.

Sans les données de la surveillance réglementaire des organismes institutionnels au Royaume Uni et des exploitants nucléaires en France, il ne pouvait y avoir de travaux COMARE et GRNC.

Les données anglaises que nous utilisons sont basées sur des déterminations effectuées par le CEFAS (Center for Environment and Aquaculture Science), agence exécutive du gouvernement britannique pour l'environnement, l'alimentation et les affaires rurales. Concernant la radio écologie marine ce laboratoire est l'équivalent au laboratoire de radio écologie de la Manche de l'IRSN ; il est doté d'un effectif de 500 personnes



et d'un financement institutionnel. Les analyses environnementales du CEFAS sont publiées dans les rapports annuels RIFE.

Dans les rapports RIFE, les données environnementales OBT et HTO sont publiées sous forme de moyennes annuelles, avec le nombre de déterminations annuelles pour chaque matrice. Nous avons exploité l'équivalent de 1 000 déterminations, recueillies de 1999 à 2008 :

- 500 déterminations pour le site de Sellafield, données dans la faune marine, **toutes supérieures à la limite de détection**, et moyenne $> 100 \text{ Bq/kg}_{\text{frais}}$;
- 300 déterminations pour les sites des centrales nucléaires de Wylfa, Heysham et Chapelcross, **toutes ces déterminations < seuil de détection de 25 Bq/kg_{frais}** ;
- 220 déterminations pour le site particulier de Cardiff, où les algues se révèlent être 100 fois moins contaminées en tritium total que la faune marine, **toutes supérieures à la limite de détection**.

Nos contradicteurs nous opposent 182 (91 x 2) déterminations effectuées récemment dans l'environnement de la Hague, en omettant de préciser que ces déterminations ont été effectuées « de 2000 à 2008 », dans un espace géographique très large : « prélevés en Manche », et que 79 % de ces déterminations concernent les algues et les patelles ou les ormeaux, bio indicateurs peu susceptibles de concentrer le tritium si l'on veut bien prendre en compte le retour d'expérience de la surveillance réglementaire du site de Cardiff.

Bilan des déterminations HTO et OBT dans la faune marine, période 2000 à 2008

- Site de Sellafield : nous avons 500 déterminations dans diverses espèces de la faune benthique, prélevées régulièrement sur le même site, bien localisées devant Sellafield.
- Site de la Hague : nous avons 36 déterminations ponctuelles dans les mêmes matrices, avec une localisation totalement imprécise : « en Manche », ce qui est un peu court pour conclure que la bioaccumulation est inexistante dans la faune marine devant l'émissaire marin de la Hague.

3 mars 2010

Signataires : Jean-Claude Amiard, Pierre Barbey, André Guillemette, Monique Sené et Jean-Claude Zerbib, membres du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin

¹ 500 000 déterminations, laboratoires exploitants 75 %, laboratoires institutionnels 22 %, laboratoires ONG 3 %. Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Sous-groupe 2. Rapport final, avril 1999.

Bioaccumulation du tritium

La bioaccumulation du tritium sous sa forme organique dans les milieux terrestres et aquatiques est une propriété observée depuis une trentaine d'années, [Kirchmann *et al.*, 1971, 1979 et 1981] et [Foulquier *et al.*, 1982]. Cette propriété a été observée pour la faune dulçaquicole, dans une étude IPSN de 1993 [Pally *et al.*, 1993].

La bioaccumulation dans l'environnement marin, proche de sites nucléaires rejetant de grandes quantités de tritium, est constatée depuis une dizaine d'années en Grande Bretagne à Cardiff et à Sellafield. Ces données ont été publiées notamment dans [RIFE, 1996 à 2008] pour la bioaccumulation dans les poissons, les crustacés et les mollusques.

Les teneurs en tritium des éléments de la faune marine sous les formes tritium total et tritium organiquement lié (OBT), rapportées à celle de l'eau de mer sous la forme HTO, varient d'un facteur 10 à Sellafield à des facteurs compris entre 1000 et 10000 à Cardiff.

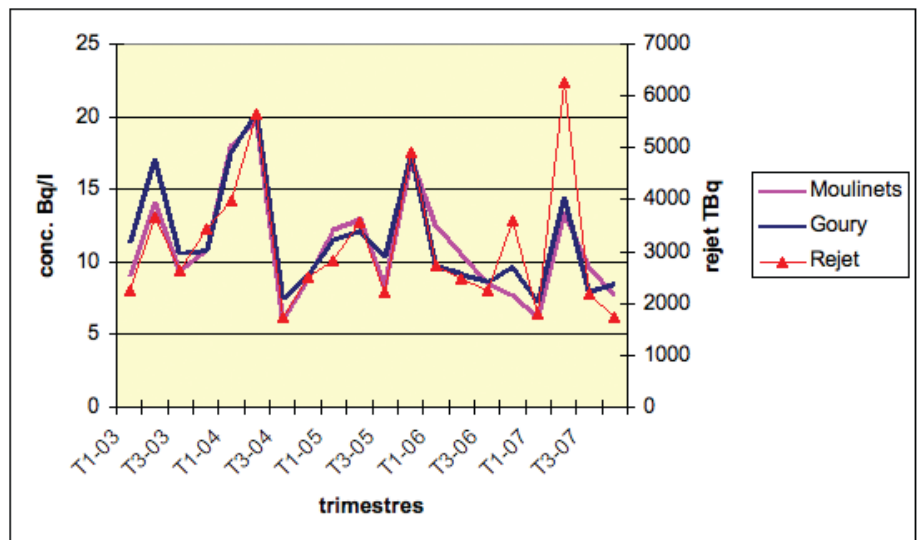
A Sellafield, dans les mollusques comme dans les poissons ou les crustacés, les contaminations ^3H organique et ^3H total en Bq/kg_{frais} sont à l'équilibre. Ce constat d'équilibre ^3H organique - ^3H total est identique pour tous les bio-indicateurs suivis sur le site de Cardiff, mollusques, poissons et algues.

La bioaccumulation du tritium dans la faune marine de la zone maritime située entre les caps de la Hague et de Flamanville fait débat : elle est retenue égale à 1 (donc inexistante) dans deux études récentes de l'IRSN [Maro *et al.*, 2008] et [IRSN, 2008], alors qu'elle était mise en évidence (en étant supérieure à 10) dans une étude commune EDF – IRSN plus ancienne sur quelques échantillons de mollusques, de crustacés et de poissons dans les années 1981 – 85 [EDF 2005].

Les algues, considérées habituellement comme de bons amplificateurs de la pollution radioactive marine, s'avèrent être de mauvais indicateurs pour suivre une contamination tritium de la faune en milieu marin. A Cardiff, où les rejets tritiés sont effectués sous la forme combinée tritium libre (HTO) et molécules marquées (OBT), la teneur en tritium (^3H organique et ^3H total) dans les fletans et les moules est 100 fois supérieure à celle des algues *Fucus serratus* [RIFE, 1996 à 2008].

1 | Le tritium libre (HTO) dans l'environnement marin

Depuis la publication de l'arrêté du 10 janvier 2003 (prélèvements d'eau et rejets), l'exploitant des usines de La Hague AREVA NC effectue des prélèvements quotidiens d'eau de mer à la côte en deux points proches de l'émissaire marin, Les Moulinets et Goury, prélèvements regroupés en aliquote mensuel, et des prélèvements trimestriels en trois points au large, pour y surveiller notamment l'activité tritium.



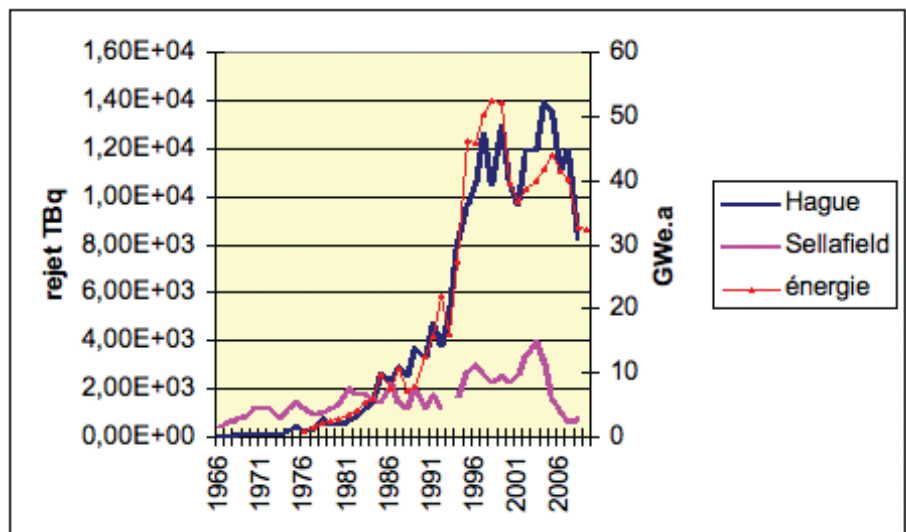
Source : AREVA NC

L'activité tritium aux stations AREVA NC à la côte varie entre 10 et 20 Bq/l. Elle fluctue avec l'importance des rejets, suivant une activité volumique moyenne ajoutée d'environ un mBq/l par TBq de tritium rejeté en mer.

Ces données AREVA NC sont en accord avec l'étude sur la modélisation hydrodynamique de dispersion des substances solubles [Bailly du Bois et Dumas, 2004], les auteurs soulignent : « Le marquage induit par les rejets de l'usine de La Hague est net : les concentrations mesurées dans le panache de l'émissaire varient de 100 à 3000 Bq/l pour chaque rejet tritié. Les concentrations induites le long des côtes du cap de La Hague sont d'environ 10 Bq/l, elles sont encore de 6 Bq/l dans le Pas de Calais. Ces valeurs sont à comparer au « bruit de fond » des eaux entrant en Manche par l'Ouest qui varie entre 0,2 et 0,3 Bq/l. »

Si l'on compare les rejets liquides de tritium cumulés de ces 10 dernières années, des sites de Sellafield et de La Hague, le site de La Hague a rejeté 5 fois plus de tritium en mer de la Manche que le site de Sellafield en mer d'Irlande : 118 000 TBq pour La Hague et 23 300 TBq pour Sellafield.

Figure n° 2 : Comparaison de l'activité du tritium dans les effluents marins des usines de La Hague et de Sellafield



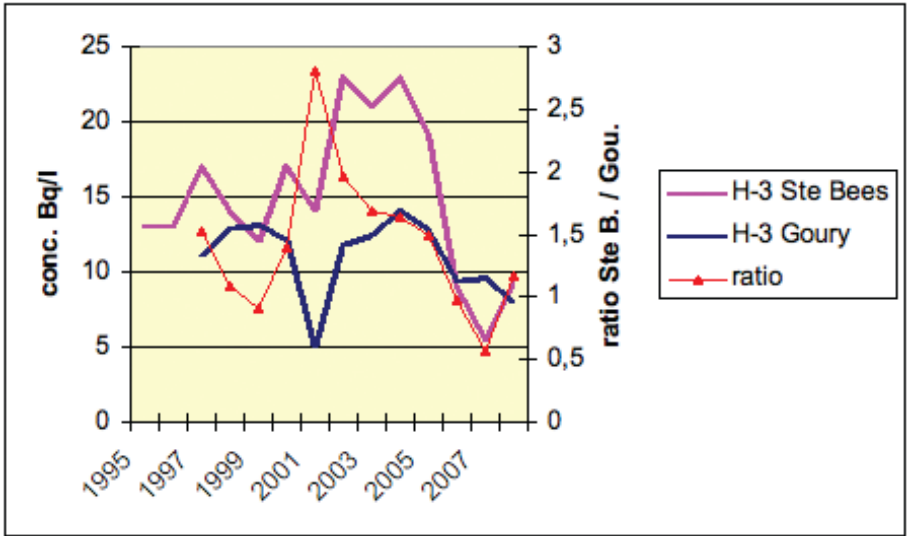
Source : AREVA NC

L'activité du tritium rejeté par l'usine de La Hague est grossièrement proportionnelle à l'énergie produite dans le combustible retraité.

Par contre, si l'on observe le tritium dans l'eau de mer autour de Sellafield sur ces 10 dernières années, les valeurs relevées à Sellafield sont similaires à celles observées à proximité du site de la Hague (mesures réalisées au niveau du port de Goury) :

- 5 à 23 Bq/l en zone proche à la côte, au point de contrôle de Ste Bees, et environ 10 Bq/l au large [RIFE, 1995 à 2007]².
- 5 à 14 Bq/l zone proche à la côte, au point de contrôle du port de Goury [AREVA NC, 2003 à 2007]. Masson et al relatent des activités moyennes attendues de l'ordre de 10 à 30 Bq/l dans la zone comprise entre les caps de Flamanville et de la Hague [IRSN, 2008].

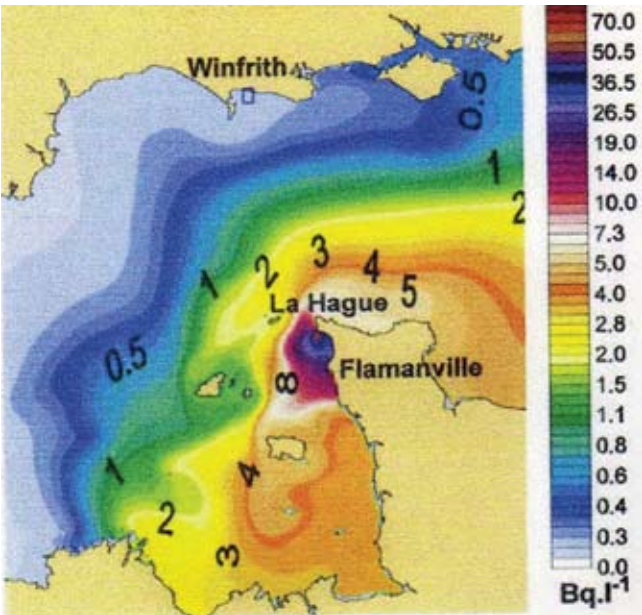
Figure n° 3 : Moyennes annuelles de l'activité volumique du tritium dans l'eau de mer aux stations de Goury (La Hague) et de Ste Bees (Sellafield).



Sources : IRSN LRM, AREVA NC et RIFE 1996 à 2008

Le ratio de l'activité tritium de l'eau de mer des deux sites montre que l'activité tritium due à Sellafield est supérieure à celle de La Hague d'un facteur deux au début des années 2000. En 2008-08 ces activités volumiques en tritium sont voisines.

Figure n° 4 : Carte [Masson et al., 2004] et [IRSN, 2008]

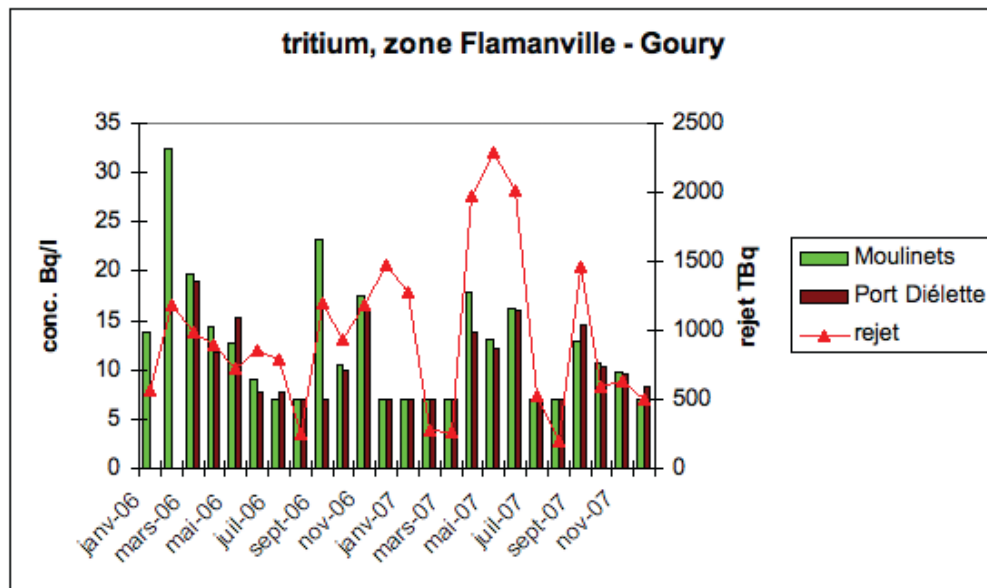


Carte des iso-concentrations en tritium dans l'eau de mer pour les rejets AREVA NC La Hague des années 2001 et 2002.

² Le coefficient de dispersion du rejet en mer du site de La Hague qui serait 20 fois supérieur à celui de Sellafield (GT GRNC du 12/03/08) pour le ³H, est de 6 en moyenne sur 10 ans d'observation des 2 sites.

Les données du tritium dans l'eau de mer aux stations de Diélette port et des Moulins, acquises par l'ACRO en 2006 et 2007 indiquent une contamination tritium instantanée similaire au niveau de ces deux stations. Elles confirment cette iso-concentration aux deux points extrêmes de la zone comprise entre les caps de Flamanville et de la Hague³. L'évolution de la contamination en tritium dans l'eau de mer suit celle de l'activité du rejet tritium du site AREVA NC La Hague.

Figure n° 5 : Tritium instantané mesuré dans l'eau de mer aux stations de Diélette et des Moulins.
(le seuil des mesures ACRO est de 7 Bq/l)



Sources : ACRO et AREVA NC

2 | Le tritium organiquement lié (OBT) dans la faune et la flore marine

2|1 | Données bibliographiques

La bioaccumulation du tritium sous sa forme organique dans les milieux terrestres et aquatiques est observée, depuis au moins une trentaine d'années. Pour le milieu terrestre, Kirchmann publiait en 1971 une étude sur le transfert et l'incorporation du tritium dans les constituants de l'herbe et du lait [Kirchmann *et al.*, 1971], le même auteur publiait également en 1979, une étude sur les transferts de tritium dans les organismes aquatiques [Kirchmann *et al.*, 1979].

Les premiers travaux sur les transferts et la bioaccumulation du tritium en milieux aquatiques, ont été par ailleurs confortés par ceux de Kirchmann [Kirchmann *et al.*, 1981], Foulquier et Pally [Foulquier *et al.*, 1982] et Pally [Pally *et al.*, 1993].

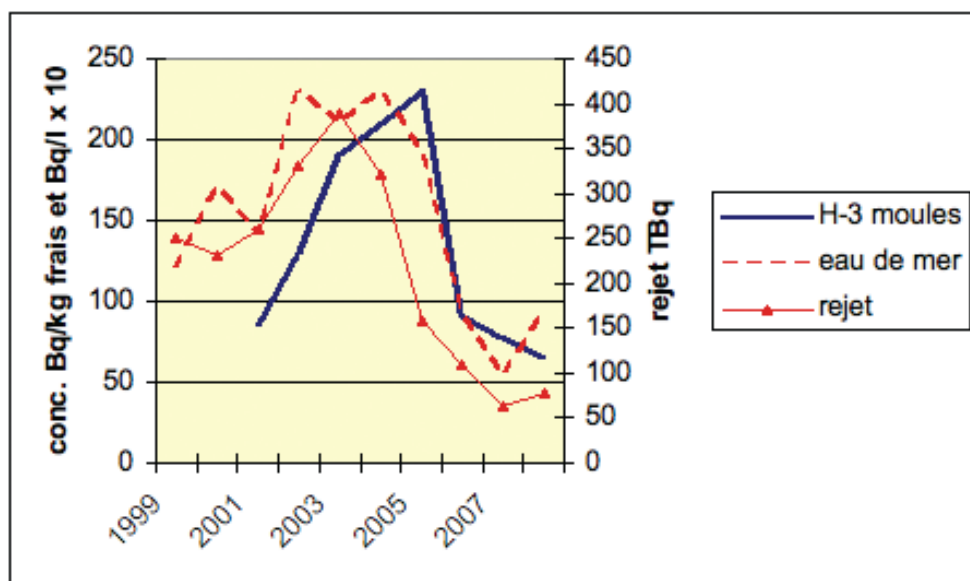
Pally soulignait l'influence des rejets de tritium du réacteur à eau lourde de Brennilis sur la base de l'activité tritium organique relevée sur 3 échantillons de poissons pêchés dans la rivière Ellez : 1030 à 2590 Bq/l d'eau de combustion, hors de tout apport exogène identifié de tritium organique, à proximité de cette centrale située dans les Monts d'Arrée, au centre de la Bretagne [Pally *et al.*, 1993].

2|2 | Données dans les zones des émissaires marins de Sellafield et de la Hague

Les publications anglaises observent la bioaccumulation du tritium sous les formes tritium total et tritium organique (OBT) dans la zone maritime proche de l'émissaire de rejets de BNGSL Sellafield à partir de 2001 [RIFE, 2002], chez les mollusques, les poissons et les crustacés, en regard de la teneur en tritium libre dans l'eau de mer de la zone observée.

La bioaccumulation, observée sur ces trois matrices sur le tritium total comme sur le tritium organique, est d'un facteur voisin de 10 par rapport à la teneur HTO de l'eau de mer prise pour référence. Les activités ³H organique et ³H total, observées depuis 1979, se situent à plus de 100 Bq/kg_{frais} dans ces trois matrices de la faune marine [RIFE, 2000] à [RIFE, 2009].

Figure n° 6 : Exemple du tritium total dans les moules à Nethertown (zone proche de Sellafield)



Source : RIFE 1996 à 2009

Le suivi radio-écologique du tritium dans les mollusques filtreurs (Fig. 6) et les poissons plats devant Sellafield, de 1999 à 2008, montre une influence du rejet tritium de Sellafield, avec une hystérésis de 1 à 2 ans entre les valeurs maximales de rejet et les valeurs maximales de pollution tritium dans les mollusques et les poissons plats.

Certains auteurs avancent l'hypothèse de l'influence des rejets de molécules marquées en tritium organique par l'usine radiochimique de Cardiff sur l'environnement marin de Sellafield.

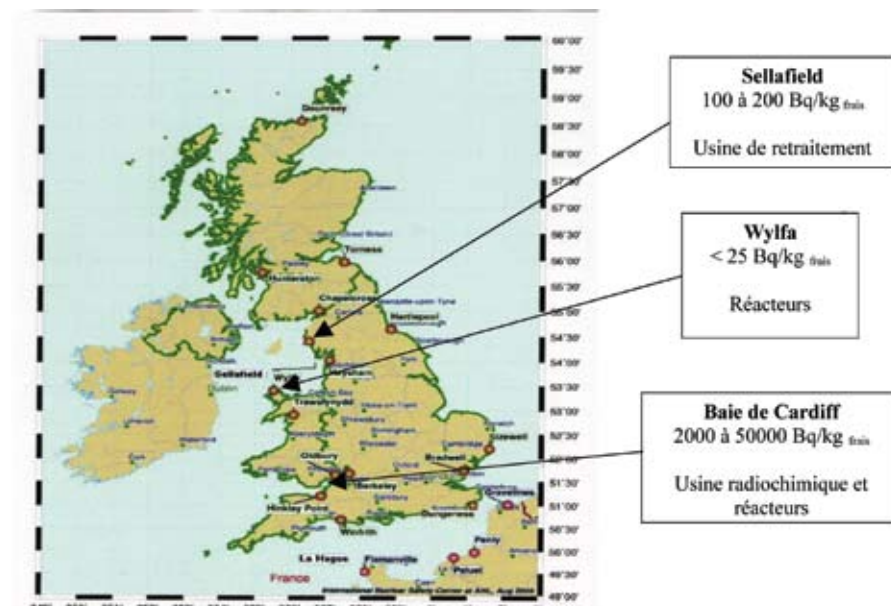
Les analyses publiées dans les publications RIFE ne corroborent pas cette hypothèse. Devant la centrale nucléaire de Wylfa, située sur la côte

³ Antoine Bemollin, ACRO, communication personnelle

ouest de l'Angleterre entre Cardiff et Sellafield, les mesures faites sur les bio-indicateurs (poissons plats et moules) n'indiquent pas de présence décelable de tritium, alors que ceux de Sellafield, zone située encore plus au nord de Wyllfa par rapport à la baie de Cardiff, sont en permanence à des teneurs ^3H organique et ^3H total comprises entre 100 et 200 Bq/kg_{fraîs} (carte des installations nucléaires anglaises ci-après, Fig. 7).

Distribution du tritium, ^3H organique et ^3H total, chez *Platichys flesus* (flet) et *Pleuronectes platessa* (carrelet ou plie) autour des sites nucléaires de la côte ouest de l'Angleterre :

Figure n°7 : Carte des sites nucléaires anglais et pollutions tritium comparées chez les poissons plats de 2000 à 2008.



Sources : RIFE 2001 à 2008

Les teneurs en tritium sous la forme HTO dans l'eau de mer, à proximité des émissaires de Sellafield en mer d'Irlande et de La Hague en mer de la Manche étant sensiblement les mêmes, aussi bien en milieu proche que dans une large zone géographique, nous devrions constater un même processus de bioaccumulation du tritium dans la faune marine, d'autant qu'une partie non négligeable, environ 1/5^{ème} (18,5 % selon [EDF, 2005]), des radionucléides rejetés sont dilués dans la zone comprise entre la canalisation de rejet du site de la Hague et celles de la centrale nucléaire EDF de Flamanville (Fig. 4).

Masson et al ont étudié l'état du tritium sous les formes HTO et OBT dans la flore marine dans les échantillons d'algues brunes prélevées de Concarneau à Gravelines entre 1998 et 2002 [Masson et al., 2004]. Quelques échantillons de la faune ont fait l'objet de déterminations de l'activité du tritium sous des formes libre et organique à Concarneau et à Gravelines. Il n'y a pas eu, au cours de cette étude, de déterminations récentes sur la faune à proximité de l'émissaire d'AREVA NC La Hague. Les auteurs donnaient pour l'environnement marin de Flamanville en 1981 des valeurs d'OBT dans les crustacés, mollusques et poissons (exprimées en Bq/l d'eau de combustion) nettement supérieures à celles des *Fucus serratus* observées pour le même site, voir (Tab. 1) :

Tableau n° 1 : Tritium lié à la matière organique (Bq/l d'eau de combustion) dans l'environnement marin de la mer de la Manche de 1981 à 1995 (étude non publiée de l'IRSN et d'EDF), Masson 2004 et al. Radioprotection, Suppl. 1, Vol. 39 (2004).

Site – année	<i>Fucus serratus</i>	Crustacés	Mollusques	Poissons
Flamanville (1981)	24 à 41	152 à 185	26 à 174	126 à 174
Gravelines (1992)	10,3		20,3	
Paluel (1995)	4,5 à 5,9	6,5 à 7,6	6,5 à 13,6	

Rapportées à une valeur générique moyenne de **10 Bq/l** de tritium libre dans l'eau de mer entre les caps de Flamanville et de la Hague, [Bailly du Bois et Dumas, 2004] et carte IRSN Fig. 4, ces valeurs interpellent. Tout en notant que les années observées dans la publication et la carte ne correspondent pas à la période 1973-85.

Ces mesures d'OBT pratiquées en

1981-82 dans l'eau de combustion des poissons, mollusques et crustacés, prélevés au large de Flamanville, sont à comparer aux valeurs de tritium libre dans l'eau de mer dans la même zone, à la même période. Une étude de Wedekind, publiée en 1982, donne une valeur moyenne de 1,3 Bq/l dans le détroit du Pas de Calais, en surface, pour des prélèvements effectués en 1980-81 [Wedekind, 1982].

Quant aux mesures mensuelles de tritium dans l'eau de mer au nez de Jobourg de l'OPRI de cette période, elles sont toutes inférieures au seuil de détermination de l'époque (AAD ou AAS) de 40 Bq/l.

Entre 1,3 Bq/l et < 40Bq/l de tritium libre dans l'eau de mer en 1981, pour des valeurs de tritium organique dans les mollusques et les crustacés allant jusqu'à 140 et 150 Bq/l d'eau de combustion observées devant Flamanville cette même année.

Ces données de 1981 sont indicatives d'une bioaccumulation en tritium, comme celle constatée depuis 1999 par les anglais devant Sellafield.

2|3 Discussion

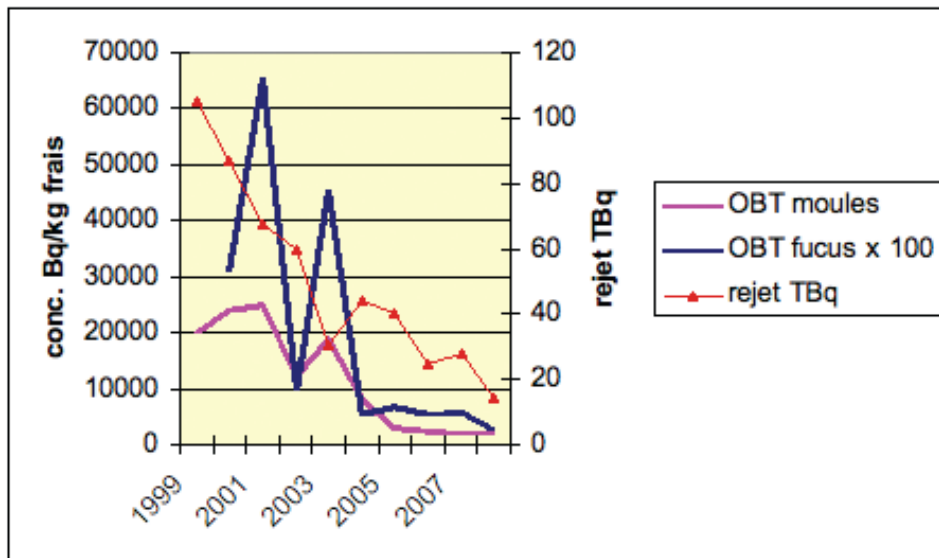
En dehors des études [Masson et al., 2004] et [EDF, 2005] pour la période 1981-1985, nous n'avions pas trouvé de publication portant sur la détermination du tritium dans la faune marine proche des émissaires de La Hague et de Flamanville. Seule une étude radioécologique décennale sur l'environnement proche du CNPE de Flamanville, effectuée par l'IRSN pour EDF, publie quelques résultats d'analyses OBT et HTO sur des prélèvements marins effectués lors du 2^{ème} trimestre de 2006 entre Flamanville et Carteret : un poisson plat, un poisson rond et un homard pêchés au « large de Flamanville », et les mêmes bio-indicateurs devant le port de Carteret [IRSN, 2008]. Ces quelques analyses ne montrent pas de bioaccumulation notable par rapport aux valeurs de tritium relevées dans l'eau de mer, mais si l'on se réfère aux relevés de tritium dans l'eau de mer en 2001-02 publiés dans le même document (voir Fig. 4), ces prélèvements ne sont pas pratiqués dans la zone la plus polluée en permanence par les rejets tritiés de La Hague à des taux supérieurs à 10 Bq/l, zone comprise entre les caps de Flamanville et de Goury.

Une analyse OBT – HTO de patelles à Goury et à une à Diélette port, ont été pratiquées en mars 2006, sans bioaccumulation tritium mise en évidence. *Patella species* est un mollusque brouteur d'algues, et les algues sont connues pour avoir une teneur proche de l'équilibre avec celle de l'eau de mer en tritium (voir § 2.3 ci-après).

3 | Les algues, un bio-indicateur non pertinent pour la surveillance environnementale de l'impact des rejets de tritium sur la faune marine

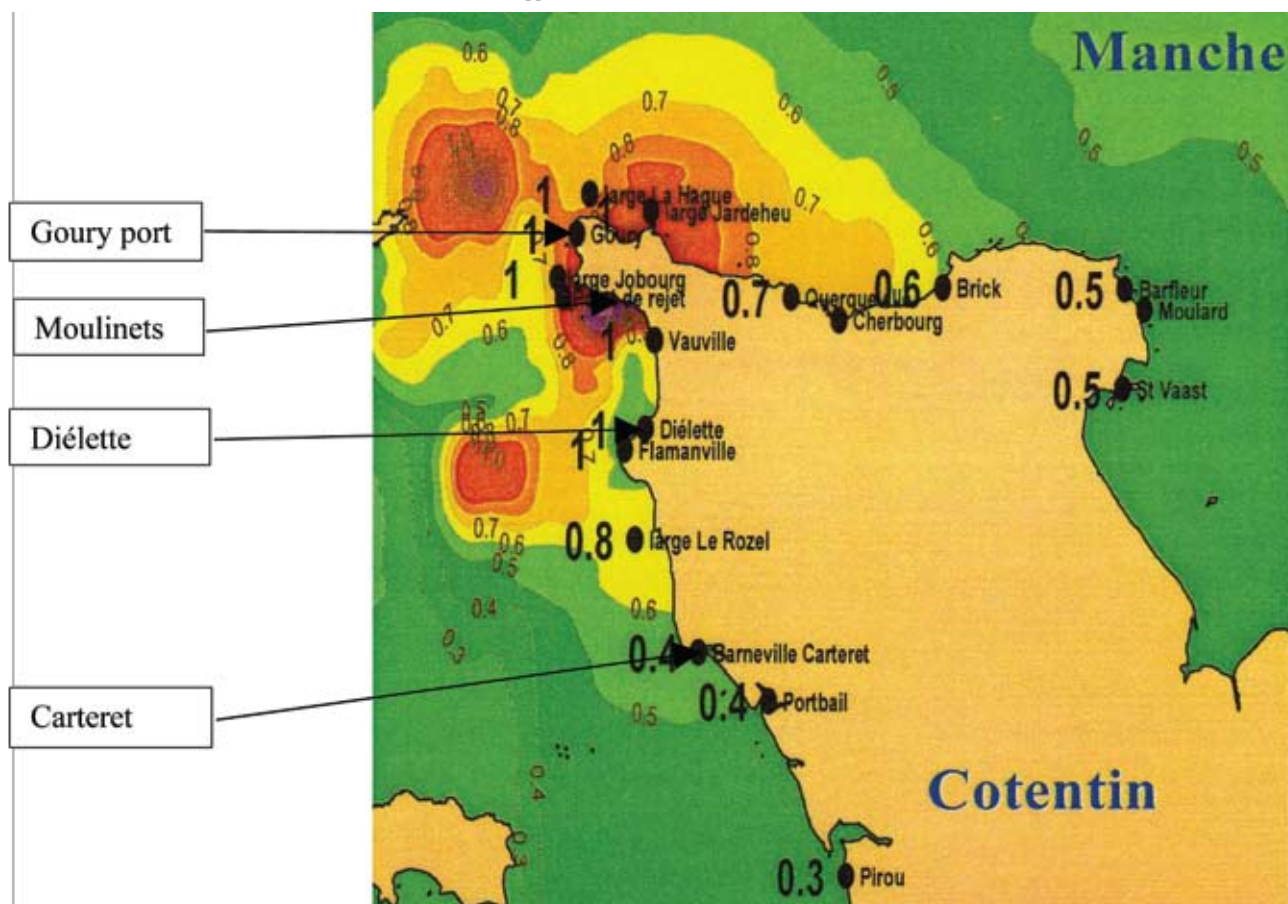
Le retour d'expérience de la surveillance réglementaire des autorités anglaises, à partir des rejets de Cardiff, rejets partiellement sous la forme OBT⁴, et les quelques données publiées en France sur le tritium dans la faune et la flore marines, montrent que les algues ne sont pas représentatives de la teneur en tritium dans les autres matrices : à Cardiff, les teneurs en tritium, sous les formes tritium total et OBT, sont pour les mollusques et les poissons, 100 fois supérieures à celles des fucus (Fig. 8).

Figure n° 8 : La mesure du tritium organique dans les éléments marins à Cardiff.



Source : RIFE 1996 à 2009

Figure n° 9 : Localisation des sites de prélèvement sur la carte de modélisation de la dispersion des rejets de l'usine de La Hague en Manche. Rapport détaillé du GT3, RNC 1999.



Source : GRNC 1999

⁴ Données comme < 5% sous la forme OBT dans les rejets tritium du site radiochimique de Nycomed-Amersham [McCubbin et al., 2001].

Les chiffres indiquent la valeur du coefficient de dilution, normalisé à 1 au point de rejet, pour des radionucléides insolubles.

Nous pouvons comparer les données *Fucus serratus* acquises par l'IRSN en mars 2006 à Goury et à Diélette avec les données ACRO et AREVA NC pour le tritium dans l'eau de mer aux mêmes stations pour le mois de mars 2006 (Tab. 2) :

Tableau n° 2 : Tritium dans les *Fucus serratus* et dans l'eau de mer en mars 2006.

Station	<i>Fucus serratus</i>			eau de mer
Expression	^3H libre Bq/l	^3H lié (MO + MS) Bq/kg	^3H total ⁵ Bq/kg _{frais}	126 à 174
Diélette port	9,5	7,1	9	11
Goury port	4,5 à 5,9	6,5 à 7,6	11,2	11

Sources : IRSN, ACRO et AREVA NC

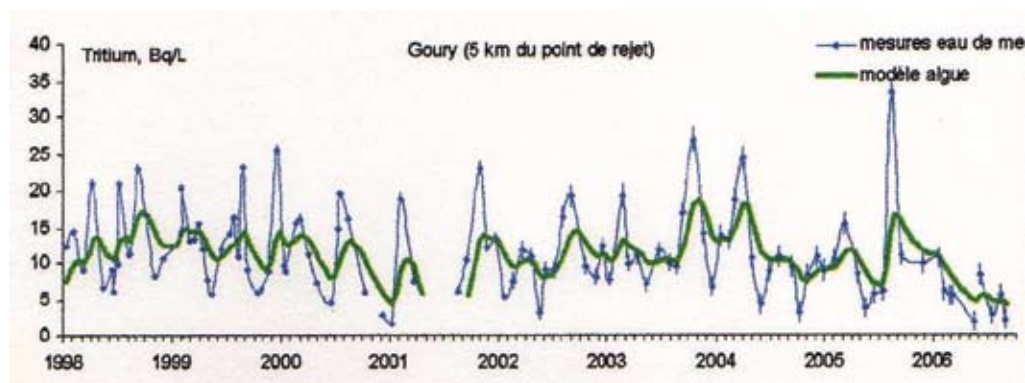
Ces données concordantes montrent que le niveau de tritium dans les algues de Flamanville est du même ordre de grandeur que celui du tritium dans l'eau de mer. Comme on peut l'observer à partir des analyses publiées depuis une dizaine d'années par les autorités anglaises sur la surveillance des sites de Sellafield et de Cardiff, s'il y a bioaccumulation du tritium dans les algues, elle est très faible.

4 | Le tritium dans les algues, une donnée utilisable pour connaître la donnée tritium libre dans l'eau de mer sur un même site

Les observations tritium mensuelles, effectuées par le LRC de l'IRSN sur les algues *Fucus serratus* et l'eau de mer au port de Goury, à 5 km du conduit de rejets en mer de l'usine AREVA NC, montrent un synchronisme constant entre les teneurs en tritium libre dans les algues et l'eau de mer (Fig. 10).

Les données RIFE du tritium dans l'eau de mer et dans les algues de la baie de Cardiff sont elles aussi éloquentes : sur 10 années d'observation, les algues sont toujours plus contaminées que la faune benthique d'un facteur 100 (Fig. 8).

Figure n°10 : Tritium libre dans l'eau de mer et les algues au port de Goury, de 1998 à 2006.



Source : Fiévet 2009, colloque CLI de la Manche, 15 avril 2009

Nous pouvons donc avoir de manière pertinente le facteur de concentration F_c , ou valeur de bioaccumulation, quand nous connaissons soit les valeurs ^3H total (^3Ht) dans les algues et dans les animaux marins prélevés sur le même site au même moment, soit les teneurs ^3H organique ($^3\text{Horg}$). F_c obtenus par les rapports $^3\text{Ht}_{\text{mollusques}} / ^3\text{Ht}_{\text{algues}}$, $^3\text{Horg}_{\text{mollusques}} / ^3\text{Horg}_{\text{algues}}$... etc. Les données du tableau 1 [Masson, 2004] et [EDF, 2005] sont inexploitable en l'état, l'OBT dans les algues et la faune est donné en valeurs extrêmes, sans précision de date de prélèvement. Les données complémentaires fournies par EDF⁶ lors des travaux du groupe impact tritium, initié par l'ASN, permettent d'estimer le F_c tritium pour quatre des échantillons prélevés dans la zone maritime proche de Flamanville en 1981 (Tableau n° 3), en supposant que la teneur en tritium des algues est égale à celle de l'eau de mer :

⁵ ^3H total reconstitué à partir des données [IRSN, 2008] et du rapport générique Ps/Pf dans les *Fucus Serratus* de 0,2

⁶ Courrier électronique de Madame Françoise Siclet, 15 avril 2009

Tableau n° 3 : Facteur de concentration (Fc) du tritium dans la faune marine en 1981, en partant de la donnée OBT algues, supposée égale à celle de l'eau de mer

Compartiment	Fucus (juin 1981)	Patelle (juin 1981)	Vieille (avril 1981)	Homard (août 1981)
OBT en Bq/l	26	44	174	185
Facteur Fc	1	1,7	6,7	7,1

A partir de deux approches différentes, données bibliographiques du tritium dans l'eau de mer ou tritium organique mesuré dans les algues, la discussion autour de ces quelques données anciennes montre que la bioaccumulation du tritium dans la faune marine pouvait être observée en 1981 devant Flamanville. Mais cette propriété n'a pas été soulignée.

La connaissance de l'état du tritium dans les formes libre et organique dans la faune marine de la « zone de concentration 1 »⁷ du Nord-Cotentin reste donc à approfondir.

Il faudra à cet effet, retenir les bio-indicateurs pertinents pour la surveillance environnementale réglementaire en effectuant des analyses sur les mêmes bio-indicateurs marins que ceux prélevés devant Sellafield depuis une dizaine d'années : poissons plats, homards, moules ou coquilles St Jacques (mollusques filtreurs), avec un protocole de prélèvement similaire à celui des autorités anglaises, notamment sur la périodicité des prélèvements et la distance de la zone de prélèvement par rapport à l'émissaire AREVA NC.

Plus la zone d'observation est étendue, plus la variabilité de la contamination sera grande, ce qui complique l'analyse des résultats. Sur ce paramètre de localisation, la zone de prélèvement de la faune benthique est circonscrite à deux carrés de 7 km de côté de part et d'autre du conduit de rejet de Sellafield ; elle s'étend de 80 km (zone ouest) à 50 km (zone nord) de part et d'autre du conduit de rejet de La Hague, pour la surveillance des mêmes bio-indicateurs.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ACRO 2007, Bilan des prélèvements effectués en 2006 dans le cadre de l'observation des niveaux et des tendances de la radioactivité d'écosystèmes aquatiques du bassin de Seine-Normandie. RAP061215(01)-RIV-v2-AB, 11/07/2007.

AREVA NC, 2005. Rapport annuel de surveillance de l'environnement. Année 2005. AREVA NC, Etablissement de La Hague.

AREVA NC, 2006. Rapport annuel de surveillance de l'environnement. Année 2006. AREVA NC, Etablissement de La Hague.

AREVA NC, 2007. Rapport annuel de surveillance de l'environnement. Année 2007. AREVA NC, Etablissement de La Hague.

Bailly du Bois P. et Dumas F., 2004. Modélisation hydrodynamique de la dispersion à court terme dans une mer macrotidale : validation par des mesures à haute résolution de traceurs solubles. VIIIème Journées Nationales Génie Civil – Génie Côtier, Compiègne, 7-9 septembre 2004.

CEA 1966 à 1975. Surveillance du site et de l'environnement. Service de protection. Commissariat à l'Energie Atomique. Direction des productions. Centre de La Hague. Rapports trimestriels 1966 à 1975.

CEFAS 2007, Radiological habits survey : Sellafield Review, 2006. Shellfish consumption and intertidal occupancy review, Environment Report RL 11/07, 2007.

CERRIE 2002, Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters (CERRIE), Paper 5-4, Uncertainties in Wr and RBE, 5th Meeting, August 2002.

CERRIE 2004, Report of the Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters (CERRIE), october 2004.

COGEMA 1976 à 2002. Surveillance trimestrielle. Environnement de La Hague. Service de Prévention et de Radioprotection. COGEMA La Hague. Rapports trimestriels 1976 à 2002.

COGEMA 2003. Rapport annuel de surveillance de l'environnement. Année 2003. COGEMA La Hague.

COGEMA 2004. Rapport annuel de surveillance de l'environnement. Année 2004. COGEMA La Hague.

COPIL GRNC 2007. Campagne de prélèvements et de mesures chimiques dans l'environnement du Nord-Cotentin, Groupe Radiécologie Nord-Cotentin, 3ème mission, Rapport juillet 2007.

Croudace I.W. and Warwick P.E, Organically-bound tritium (OBT) dispersion and accumulation in Severn Estuary sediments, (R01034) - Extension to study. National Oceanographic Centre, Southampton, 2005.

De Vol, T. A. and Powel, B. A, Theoretical organically bound tritium doses estimates. Health Physics, Vol. 86 (2), pp (183-86), 2004.

EDF 2005. Bilan radio-écologique de l'environnement terrestre et marin du CNPE de Flamanville (1973 – 2003), référence : ELIER/05 B BPE, 2005.

EDF 2007-1, Mémoire en réponse aux dépositions issues des registres et aux observations des commissaires enquêteurs. Enquête publique conduite du 14 février au 17 mars 2007. Demande d'autorisation de rejets d'effluents liquides et gazeux et de prélèvements d'eau du site de Flamanville, mars 2007.

EDF 2007-2. Rapport annuel 2007 de surveillance de l'environnement de Flamanville.

Fairlie I, 2008, Estimated radionuclide releases and collective doses from the Rokkasho reprocessing facility. By Dr. Ian Fairlie, commissioned by Greenpeace Japan, February 2008.

Foulquier L. et Pally M, Données sur la teneur en tritium lié de poissons des grands fleuves français. Annales de l'association belge de radio-protection 7: pp (259-281), 1982.

GRNC 2005, Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement de Cogéma-La Hague. Année 2003, publié en 2005.

GRNC, 2006. Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement de Cogéma-La Hague. Année 2004, publié en 2006.

GRNC, 2007. Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement de Cogéma-La Hague. Année 2005, publié en 2007.

GRNC, 2009. Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement de Cogéma-La Hague. Année 2006, publié en 2009.

Guillemette A, 2007. ACRO, Analyse critique de la demande de modification des autorisations de rejets du site EDF de Flamanville, rejets de tritium et de carbone 14. Rapport de la commission d'enquête, mars 2007.

Harrison J.D, Khursheed, A and Lambert, B.E, Uncertainties in dose coefficients for intakes of tritiated water and organically bound forms of tritium by members of the public, Radiation Protection Dosimetry, 98, pp (299 – 311) 2002.

Harrison, J.D., and Lambert, B.E., 2003. Uncertainties in dose coefficients for intakes of tritiated water and organically bound forms of tritium by members of the public, Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters (CERRIE), Paper 9-15, april 2003.

Hodgson A. Scott, J.E, Fell T.P. and Harrison J.D, 2005, Radiation doses from the consumption of Cardiff Bay flounder containing organically bound tritium (OBT). Project SC020042/SR. Environment Agency, Bristol, 2005.

⁷ Située entre les caps de Flamanville et de la Hague, voir cartes IRSN Fig. 4 et Fig. 9

Intechmer 1994. Etude de l'impact des rejets de dragage du port militaire de Cherbourg sur le milieu marin, 4 rapports de janvier 1992 à avril 1994, Conservatoire National des Arts et Métiers, Institut national des techniques de la mer, 1994.

Hydro Québec Production, 2002. Evaluation des risques écotoxicologiques et toxicologiques associés à l'exploitation des centrales de Gentilly-2 et de Bécancour, juin 2002.

Hydro Québec Production, 2006. Résultats du programme de surveillance de l'environnement du site de Gentilly. Rapport annuel 2005, publié le 7 juillet 2006.

ICRP 1991, Recommendations of the international commission on radiological protection, Publication 60, Annuals of the ICRP, Oxford, Pergamon Press, 1991.

IRSN 2005, Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2004 - Synthèse des réseaux de surveillance de l'IRSN. Rapport DEI/SESURE n° 2005-33.

IRSN 2007 (a), Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2005 - Synthèse des réseaux de surveillance de l'IRSN. Rapport DEI/SESURE n° 2007-30.

IRSN 2007 (b), Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2006 - Synthèse des réseaux de surveillance de l'IRSN. Rapport DEI/SESURE n° 2007-72.

IRSN 2008, Bilan radioécologique décennal 2006 de l'environnement proche du centre nucléaire de production d'électricité de Flamanville. Rapport DEI/SCRE n° 2008-41.

Kirchmann R, Van Den Hoek J. and Lafontaine A, Transfert et incorporation du tritium dans les constituants de l'herbe et du lait en conditions naturelles. *Health Physics*, Vol. 21(1), pp (61-66), July 1971.

Kirchmann R, Bonotto S, Soman S. D, Krishnamoorthly T. M, Lyengar T. S. and Moghisi A, Transfer and incorporation of tritium in aquatic organisms in behaviour of the tritium in the environment. *Vienne, IAEA-SM-232/74*, pp (187-203), 1979.

Kirchmann R. et Dupont J.L, Rôle du tritium dans les rejets d'effluents radioactifs liquides provenant des installations nucléaires. *Bull. Rech. Agron. Grembloux*, Vol.16, pp (111-136), 1981.

Lambert B, Welsh tritium (Invited Editorial). *J. Radiol. Prot.*, Vol. 21, pp (333-335), 2001.

Leonard K.S, McCubbin D. and Bailey T.A, Organic forms of tritium in food chains, Project R01023/C0814, RL 6/01, Cefas, Lowestoft, 2001.

McCubbin D, Leonard K.S, Bailey, T.A, Williams J. and Tossell P, Incorporation of organic tritium (^3H) by marine organisms and sediment in the Severn Estuary/Bristol Channel (UK), *Mar. Pollut. Bull.*, Vol. 42 (10), pp (852-63), 2001.

Mobbs S, Barraclough I, Napier I, Casey A, Poynter R. and Harvey M, A review of the use and disposal of gaseous tritium light devices, Environment Agency, Lancaster, 1998.

Maro M, Masson M, Fievet B, Bailly du Bois P, Connan O, Boust D, Germain P, Analyse critique des données disponibles de carbone 14 et de tritium dans le Nord-Cotentin et en Manche. Rapport DEI/SECURE/2008-06, 2008.

Masson M, Siclet F., Fournier M, Maigret A, Gontier G. and Bailly du Bois P, Tritium along the French Coast of the English Channel, *Radioprotection*, Vol. 39, suppl. 1, 2004.

OSPAR 2006, Rapport national français de mise en œuvre de la Recommandation PARCOM 91/4 sur les rejets radioactifs, Commission OSPAR 2006.

Pally M, Barré A. et Foulquier L, Tritium associé à la matière organique de sédiments, végétaux et poissons des principaux cours d'eau français, *Verh. Internat. Verein. Limnol.* Vol. 25, pp (285-289), Stuttgart, September 1993.

RIFE-1 à 14. Food Standards Agency and Scottish Environment Protection Agency, 1996 à 2009. Radioactivity in Food and the Environment, 1995 à 2007. Food Standards Agency and Scottish Environment Protection Agency, London and Stirling.

Rowe J, James A. and Allott R, Potential for bio-accumulation of organically bound tritium in the environment: review of monitoring data, NCAS/TR/2000/026. Environment Agency, Lancaster, 2001.

Wedekind C, 1982. Tritium distribution and spreading in the North Sea and the Baltic Sea in 1980/81, as well as in the surface water of the North Atlantic in 1979, *Ocean Dynamics*. Vol. 35, N° 4, July 1982.

Williams J.L, Russ R.M, McCubbin D. and Knowles J.F, An overview of tritium behaviour in the Severn estuary (UK), *J. Rad. Prot.*, Vol. 21, pp (337-44), 2001.

Le procédé mis en œuvre sur l'usine AREVA NC de La Hague pour le traitement des combustibles usés conduit à un rejet de tritium libre

Jean-François Valéry¹, Patrick Devin²,

¹AREVA NC

²AREVA

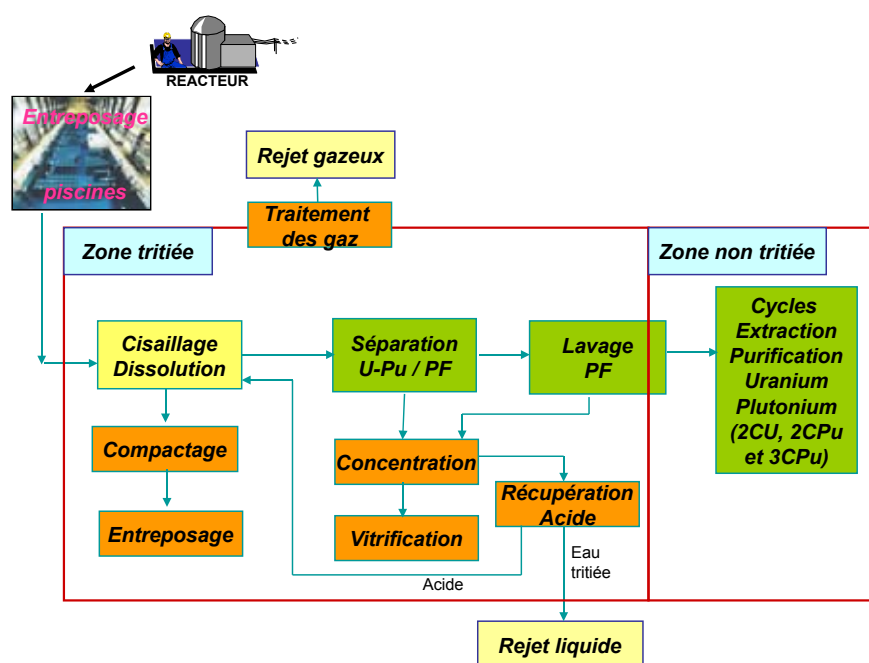
Le procédé hydrométallurgique mis en œuvre dans l'usine AREVA NC de La Hague pour le traitement des combustibles usés conduit à un rejet de tritium libre, principalement sous forme liquide dans le milieu marin. Cet article apporte dans un premier temps les éléments destinés à mieux cerner la gestion de l'extractant (TBP) et du diluant (TPH) mis en œuvre dans les unités de production et constituant l'essentiel du flux d'organiques. Ces deux premières parties ont pour objectif de démontrer l'absence de tritiation de ces molécules organiques, ce qui est consolidé dans les deux dernières parties consacrées à la métrologie du tritium dans les rejets et la surveillance de l'environnement.

1 | Maintien du tritium dans une zone tritiée

Après cisailage et dissolution du combustible, le tritium contenu dans le gainage reste piégé dans les coques destinées à être compactées et conditionnées en CSD-C, après lavage et séchage, pour constituer un déchet solide.

La fraction du tritium contenue dans l'oxyde du combustible (non piégé dans les gaines du combustible) est quant à elle libérée lors de l'opération de dissolution. Le tritium est ensuite rejeté en mer principalement dans les eaux dites « tritiées » (environ 99,5 %) épurées des autres radionucléides. Une infime partie de ce tritium, compte tenu des propriétés de diffusion de ce radionucléide, est rejetée sous forme gazeuse à partir de la ventilation du procédé de traitement (environ 0,5 %).

Figure 1 : Illustration du comportement du tritium lors du traitement du combustible usé



Les installations de traitement de l'usine AREVA NC de La Hague ont été conçues de façon à confiner le tritium dans une zone restreinte de l'usine appelée zone tritiée et à le canaliser pour son rejet en mer (voir figure 1).

Les objectifs suivis sont :

- d'une part, de simplifier la manipulation d'acide nitrique recyclé dans la zone non tritiée et de limiter le risque de contamination des travailleurs à la zone tritiée,
- d'autre part, de minimiser les rejets de tritium dans les effluents gazeux et de favoriser les rejets de tritium dans les effluents liquides afin de bénéficier de l'importante réduction de l'impact permise par la dilution dans le milieu marin.

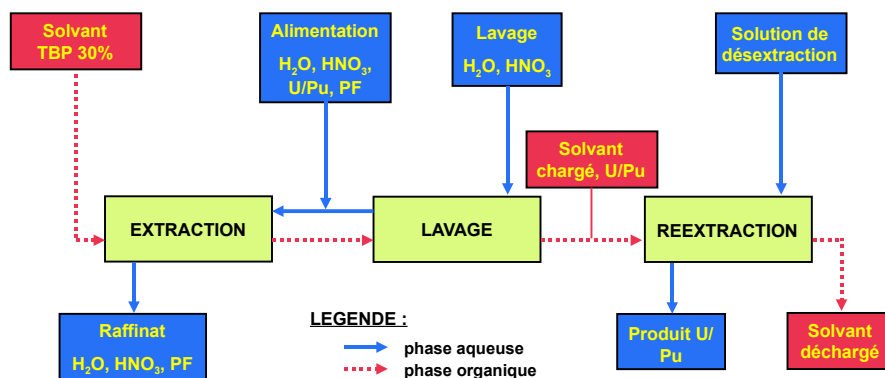
Lors des opérations de dissolution dans l'acide nitrique et d'extraction en phase solvant, le tritium contenu dans le combustible reste donc principalement dans la phase liquide aqueuse contenant les produits de fission (sous la forme HTO, TNO₃). L'essentiel du tritium est confiné dans une seule partie de l'usine correspondant à la tête d'usine et aux unités de concentration des produits de fission. Cette quantité est réduite au maximum en lavant le solvant avec une solution nitrique diluée préparée à partir d'eau non tritiée. Lors de la dernière opération de concentration des produits de fission, le tritium suit le flux aqueux et se retrouve principalement dans les distillats d'évaporation (eaux tritiées).

Le flux liquide qui existe entre la zone tritiée et la zone non tritiée de l'usine AREVA NC de La Hague est donc celui du solvant (solvant chargé et solvant recyclé).

Les gaz de ventilation sont lavés avec une solution d'eau non tritiée dans les unités de traitement des gaz afin de réduire les rejets de tritium vers l'atmosphère.

- une étape d'extraction au cours de laquelle l'uranium et/ou le plutonium sont extraits par le TBP présent dans le solvant, tandis que les PF non extraits restent dans le raffinat aqueux,
- une étape de lavage de la phase organique chargée, par une solution acide; ce lavage permettant une meilleure décontamination vis-à-vis des PF,
- une étape de réextraction, au cours de laquelle l'uranium et le plutonium (ensemble ou successivement) sont réextraits par une phase aqueuse.

Figure 2 : Schéma général d'un cycle d'extraction



2 | Gestion du solvant organique dans l'usine AREVA NC de La Hague

2.1 | Principe général d'un cycle d'extraction

Le procédé mis en œuvre dans l'usine AREVA NC de La Hague consiste en une récupération des matières valorisables à l'aide d'un procédé de type hydrométallurgique fondé sur le principe de l'extraction liquide / liquide. Il s'agit du **procédé PUREX**.

Le solvant utilisé dans ce procédé est un solvant sélectif de l'U et du Pu (les produits de fission et le tritium notamment restent en phase aqueuse). Celui-ci comprend un extractant et un diluant.

L'extractant utilisé dans l'usine AREVA NC de La Hague est le TBP (TriButylPhosphate, C₁₂H₂₇PO₄). Le même produit est mis en œuvre pour les usines de recyclage anglaise (usine THORP) et japonaise (usine RRP). Cet extractant a été choisi pour :

- sa sélectivité vis-à-vis de l'U et Pu,
- sa bonne résistance à l'hydrolyse dans les milieux nitriques et à la radiolyse,
- son aptitude à la régénération chimique.

L'extractant mis en œuvre dans les usines de recyclage de combustibles usés est dilué dans un diluant inerte qui améliore ses propriétés hydrodynamiques. Il permet en effet une baisse de la densité et de la viscosité du solvant par rapport aux caractéristiques de l'extractant seul.

Le diluant utilisé à La Hague est le TPH (TétraPolypropylène Hydro-géné). Ce composé n'est pas soluble dans l'eau. Il n'est donc pas présent dans les rejets liquides du site.

Pour les usines anglaise et japonaise, le diluant utilisé est respectivement l'Odorless Kérosène (THORP) et le n-dodécane (RRP).

La mise en œuvre d'un cycle d'extraction liquide/liquide pour la récupération de l'uranium et du plutonium comprend au minimum (voir figure 2) :

Le lavage qui est effectué sur le solvant chargé avant réextraction avec une phase aqueuse non tritiée constitue le barrage tritium. Ce barrage prévient ainsi la sortie d'eau tritiée vers la zone non tritiée de l'usine AREVA NC de La Hague.

2.2 | Dégradation du solvant et traitement du solvant

Au cours de son utilisation, le TBP est soumis à deux phénomènes de dégradation : l'hydrolyse et la radiolyse. Le taux de dégradation du TBP dépend essentiellement de son temps de séjour dans le cycle, c'est-à-dire de son temps de contact avec les phases aqueuses et les matières radioactives.

Ces deux phénomènes de dégradation conduisent :

- essentiellement à des produits de dégradation acides : HDBP (acide dibutylphosphorique), H₂MBP (acide monobutylphosphorique), H₃PO₄ (acide phosphorique),
- en proportion moindre, à des acides carboxyliques, des espèces organiques types ROH, RCO, RNO₂, RNO₃.

Les phénomènes d'hydrolyse et de radiolyse sont d'intensité variable en fonction des cycles concernés, c'est-à-dire de leur acidité, du type et du niveau de la radioactivité

Avant réutilisation dans les cycles d'extraction, le solvant doit être traité chimiquement pour éviter l'accumulation de ces produits de dégradation résultant de l'hydrolyse et de la radiolyse et aussi d'espèces entraînées tels que U, Pu et produits de fission.

Cette opération d'épuration est effectuée dans les unités de traitement solvant. Elles comprennent les opérations suivantes (voir figure 3) :

- un lavage au carbonate de sodium (Na₂CO₃) qui permet :
- l'élimination de l'U et du Pu présents dans le solvant, par formation de complexes solubles en phase aqueuse,
- la neutralisation de l'acide contenu dans le solvant en sortie du (des) cycle(s) d'extraction.

- un lavage à l'acide nitrique (HNO_3) qui permet l'extraction des complexes à longues chaînes formés pendant le lavage au carbonate et présents dans le solvant.
- Effectué entre deux lavages au carbonate, ce lavage à l'acide nitrique permet de clarifier le solvant pour limiter les entraînements de phase aqueuse.
- un lavage à la soude (NaOH) qui permet l'élimination de HDBP et de H_2MBP présents dans le solvant.

Figure 3 : Schéma général d'un traitement solvant

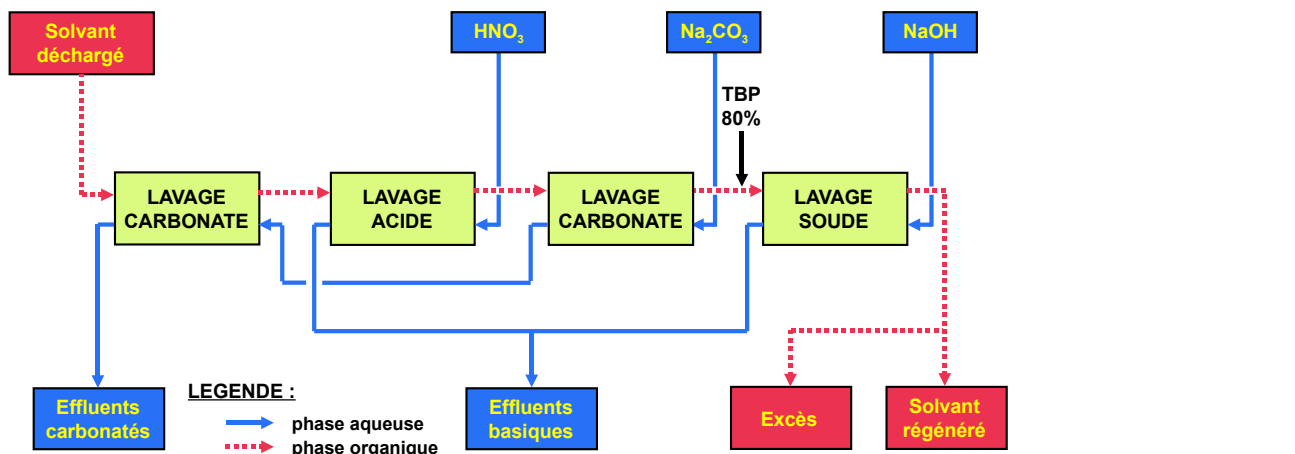
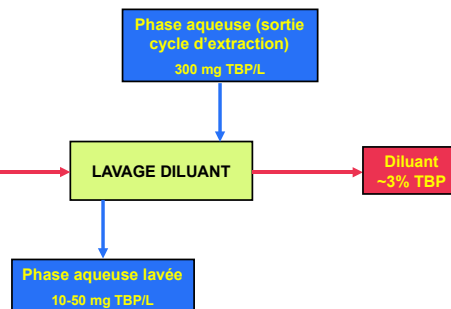


Figure 4 : Principe d'un lavage diluant



Les effluents alcalins générés par les unités de traitement solvant sont ensuite dirigés vers des unités de concentration. Les concentrats d'effluents basiques qui en résultent sont alors envoyés :

- soit vers une unité de vitrification,
- Préalablement à l'étape de calcination / vitrification un traitement de minéralisation (traitement de Fenton) est réalisé afin de détruire les molécules organiques contenues dans les concentrats.
- Soit vers une unité de traitement chimique (atelier STE 3).
- Dans le cadre de cette unité, un séparateur solvant est présent en entrée de la chaîne de traitement chimique afin d'éviter l'entrée de phase organique démixée dans le procédé.
- Pour la fraction du TBP dissous dans les effluents à traiter, on observe un entraînement de ce TBP avec les boues issues des coprécipitations du traitement chimique.

A noter que les effluents issus des unités de traitement solvant des cycles uranium sont dirigés vers le réseau des effluents V (effluents à vérifier avant rejet). Pour mémoire, il s'agit de cycles uranium non tritiés et pour lesquels l'activité est très faible.

2/3| Lavage au diluant

Toute phase aqueuse sortant d'un cycle d'extraction contient du TBP dissous et une fraction de TBP entraîné mécaniquement. Suivant l'acidité et la température, la teneur en TBP dissous dans une phase aqueuse se situe entre 200 et 300 mg/L. La fraction due à l'entraînement mécanique dépend du type d'extracteur utilisé (stabilité de l'émulsion créée).

Toutes les phases aqueuses sortant d'un cycle d'extraction sont dirigées, directement ou indirectement, vers un évaporateur dans lequel le TBP est indésirable.

Aussi, afin de réduire au maximum l'entraînement de TBP dans les phases aqueuses, celles-ci sont systématiquement lavées par un petit débit de diluant (figure 4).

Les lavages diluant se montrent très efficaces. La gestion choisie pour l'usine AREVA NC de La Hague consiste alors à mélanger le diluant additionnel à la boucle solvant du cycle concerné, avec pour double conséquence :

- l'augmentation de l'inventaire (ou hold-up) de la boucle solvant,
- la diminution de la concentration en TBP dans la boucle solvant.
- Cette diminution de la concentration en TBP nécessite donc de faire un appoint de TBP concentré ($\text{TBP} \gg 30\%$) dans les cycles pour rétablir le titre à 30%, ce qui augmente encore l'inventaire des boucles solvants.

L'unité de traitement des effluents organiques présentée dans le chapitre suivant permet de maîtriser ces conséquences.

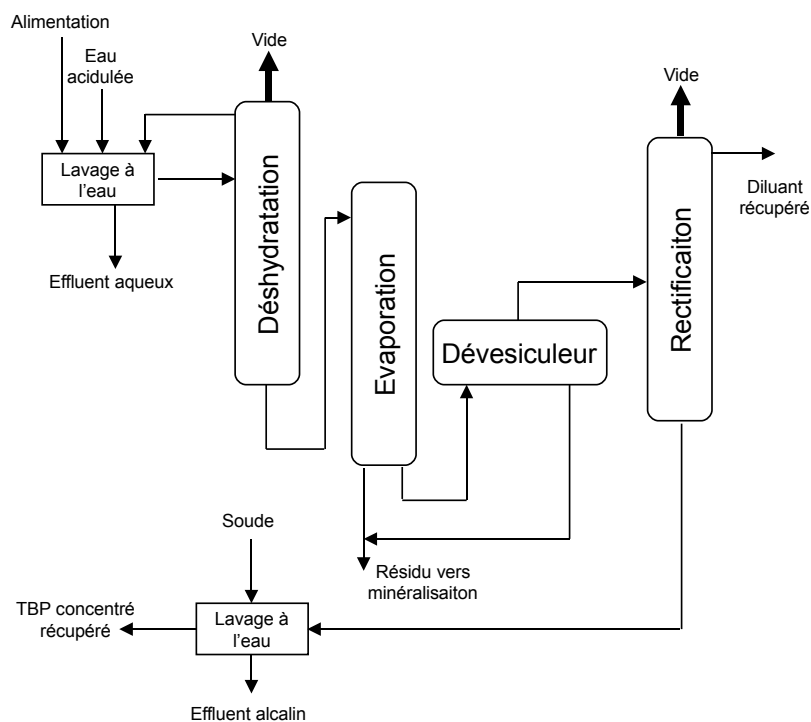
2/4| Traitement des effluents organiques : l'unité TEO

L'unité TEO permet de traiter l'excès de solvant engendré par l'utilisation des lavages diluant et de procéder à une épuration approfondie du solvant de ses produits de dégradation.

Elle inclut une étape d'évaporation et une étape de distillation sous vide permettant de purifier et de séparer le diluant et le TBP concentré tout en limitant la dégradation thermique (voir figure 5).

L'étape d'évaporation produit un résidu de faible débit qui constitue le déchet organique ultime. Celui-ci fait l'objet d'une destruction par minéralisation.

L'étape de distillation produit, en tête de colonne, un diluant quasi exempt de TBP et en pied de colonne, du TBP à 80%. Ces deux produits sont recyclés dans les cycles d'extraction de l'usine AREVA NC de La Hague.



2|5| Bilan

Le mode de gestion du solvant dans l'usine AREVA NC de La Hague procure un bon renouvellement des boucles solvant ce qui constitue une condition essentielle au maintien de l'efficacité des extractions. Cette gestion produit par ailleurs un faible volume de déchets organiques à traiter et à conditionner.

Un fonctionnement des extractions des unités de production de l'usine AREVA NC de La Hague (UP3 et UP2-800) a ainsi été réalisé sans renouvellement massif du solvant depuis leur démarrage (> 15 ans).

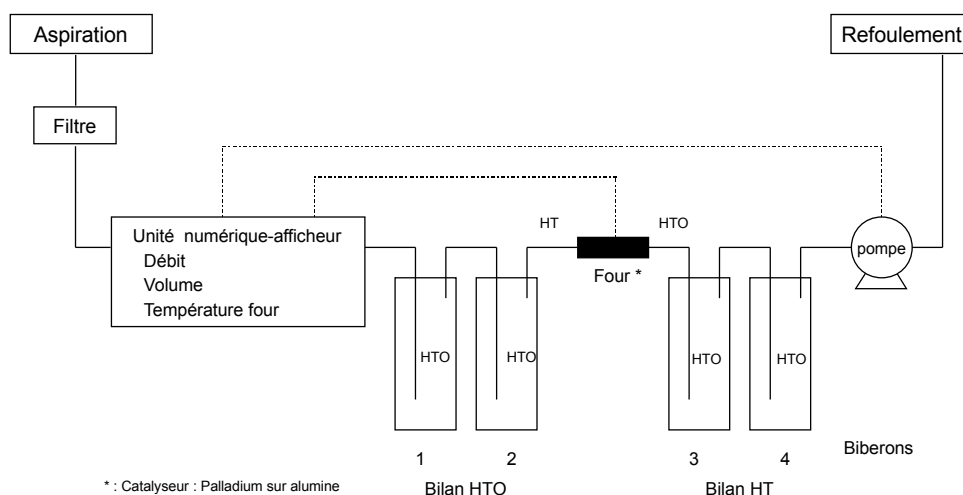
Aucun transfert de tritium via le solvant organique n'a été observé des zones tritiées vers les zones non tritiées des usines durant cette période.

3| Mesure de l'activité tritium dans les effluents

Concernant les effluents aqueux, chaque cuve d'effluent à rejeter en mer fait l'objet d'analyses avant l'autorisation de rejet en mer et pour permettre la réalisation des bilans mensuels réglementaires. Le tritium est majoritairement sous forme d'eau tritiée HTO (environ 250 g de HTO dans 40 000 t d'eau soit environ 38 g de tritium : dilution 1/160 000 000). La mesure de l'activité du tritium est effectuée pour chaque rejet d'effluents susceptibles d'en contenir. Cette mesure est réalisée par scintillation liquide à partir d'un mélange de l'échantillon représentatif, dilué et/ou distillé, avec du liquide scintillant.

Les gaz libérés lors des opérations de cisailage et de dissolution passent dans différentes colonnes de recombinaison et de lavage puis sont filtrés avant rejet. La radioactivité résiduelle rejetée sous forme de gaz transite par les émissaires qui font l'objet d'une surveillance en temps réel et des prélèvements en continu analysés au laboratoire. Le tritium contenu dans les effluents gazeux est piégé pour mesures et bilans dans 4 pots en série remplis d'eau. Le contenu des quatre pots des barboteurs en place, prélevé par période (1 au 7, 8 au 14, 15 au 21 et 22 au dernier jour du mois), permet la mesure de l'activité par scintillation liquide. La vapeur d'eau tritiée (HTO) ainsi que le gaz tritium (HT) oxydé à l'aide d'un four sont ainsi mesurés (voir figure 6).

Figure 6 : Mesure du tritium gazeux



* : Catalyseur : Palladium sur alumine

L'ensemble de ces mesures fait l'objet de contrôles croisés spécifiés par l'ASN et réalisés par l'IRSN. Ils font également l'objet de contrôles inopinés réalisés par l'ASN. Enfin, ils ont également été soumis à une visite de vérification de la Commission européenne dans le cadre de l'article 35 du traité Euratom.

4 | Surveillance du tritium dans l'environnement

Le programme annuel de surveillance de la radioactivité de l'environnement est établi sous le contrôle de l'ASN. Il fixe les natures, fréquences, localisations et modalités techniques des mesures. Les résultats sont transmis mensuellement dans les registres réglementaires à l'ASN et depuis début 2009 au réseau national de mesures de la radioactivité de l'environnement géré par l'IRSN. Ces données sont intégrées dans le rapport annuel public présenté à la Commission Locale d'Information (CLI) de La Hague. Elles sont également présentées dans le rapport environnemental, social et sociétal de l'établissement et seront consultables par le public sur Internet en 2010 dans le cadre du réseau national de mesures de la radioactivité de l'environnement. La surveillance de l'environnement et des rejets représente annuellement environ 20 000 prélèvements et 70 000 analyses. La mesure du tritium, tout milieu confondu (marin, atmosphérique, aquatique et terrestre) représente environ 8800 mesures, soit plus de 12 % des mesures du programme annuel de surveillance.

Dans le milieu marin, 400 mesures de tritium libre sont réalisées par scintillation liquide sur des échantillons filtrés d'eau de mer à la côte et au large. Des mesures non réglementaires de tritium sont également effectuées en complément pour expertise sur des algues (*fucus*) en Bq/kg frais dont les résultats indiquent une activité de l'ordre de quelques Bq/L en tritium libre ainsi qu'en tritium lié (TOL : Tritium Organiquement lié ou encore OBT : Organically Bounded Tritium). En parallèle, l'ACRO (Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest) qui réalise une surveillance autour du site notamment, a présenté des résultats similaires sur son site internet ¹ (tritium libre uniquement).

Les analyses sont effectuées pour la plupart par le laboratoire environnement de l'établissement, agréé par l'ASN et également accrédité par le COFRAC (Comité Français d'Accréditation) depuis 1996.

960 mesures de tritium dans l'air par an sont réalisées par scintillation liquide, environ 450 sur les eaux de pluie, les eaux de ruisseaux et les eaux de consommation et 1400 (réglementaires et non réglementaires) sur les eaux souterraines.

Enfin, et en complément d'environ 80 mesures de tritium libre dans le lait, environ 90 mesures de tritium lié (TOL) sont réalisées annuellement sur les végétaux (herbes et végétaux aquatiques), les fruits et légumes, dans la viande et dans les produits fermiers. La mesure du tritium lié se fait suivant la méthode suivante : combustion de l'échantillon sec dans un four à 900°C sous flux gazeux Ar/O₂. Récupération de la vapeur d'eau tritiée dans 2 pièges froids. Distillation de l'eau de combustion obtenue puis mesure du tritium par scintillation liquide (méthode CETAMA n°384 : « Dosage du tritium dans les matrices biologiques »).

Les activités mesurées dans l'environnement sont du même ordre de grandeur que les activités calculées par ACADIE² : en 2006, le rapport entre les valeurs calculées et les valeurs mesurées valait 0,98 dans la zone de dilution de 1 [1]. Le tritium est notamment utilisé pour valider le modèle de dispersion marine DISPRO développé par IFREMER et l'IRSN. Ce modèle est validé par l'IRSN pour AREVA NC La Hague à partir de la réalisation de plusieurs campagnes de mesures en mer. De nouvelles campagnes de mesures sont en cours pour modéliser la dilution des effluents tritiés en profondeur (programme DISVER).

Par ailleurs, des questions sur l'hypothèse d'une bioaccumulation du tritium et de la présence de tritium sous forme organique (TOL) dans les organismes marins ont été soulevées par les associations membres du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin (GRNC). Ce phénomène n'est pas pris en compte par le GRNC ni dans les mesures réalisées dans le milieu marin autour de La Hague. Une étude de l'IRSN [2] concernant l'analyse critique des données disponibles de carbone 14 et de tritium dans le Nord Cotentin et en Manche a été réalisée afin d'apporter des

éclairages sur ces questions. Cette étude conclut, sur la base des travaux réalisés par l'IRSN, que le facteur de concentration du tritium dans diverses espèces marines de l'écosystème de La Hague est proche de 1 contrairement à celui observé dans les écosystèmes comme ceux du chenal de Bristol (le tritium y est présent à plus de 85 % sous forme organique TOL dans les organismes) ou de Sellafield. Ceci a été confirmé par les résultats de la campagne de mesures sur le tritium organique réalisée par l'IRSN pour EDF dans le cadre du bilan radioécologique décennal de la CNPE de Flamanville en Nord-Cotentin. En effet, il ressort de cette campagne que l'activité moyenne des organismes en TOL (eau de combustion) et en HTO (eau libre) est de 10 Bq/L, que le rapport moyen TOL/HTO est de $1,1 \pm 0,3$, que l'activité moyenne de l'eau de mer étant de 10 Bq/L (pour une eau entrant en Manche de l'ordre de 0,1 à 0,2 Bq/L), le facteur de concentration moyen est de 1 et enfin que le tritium est présent à plus de 85 % sous forme libre dans les organismes.

Par la suite, le laboratoire de radioécologie de Cherbourg (LRC) de l'IRSN a poursuivi ses investigations qui ont été présentées lors des journées SFRP sur le tritium les 23 et 24 septembre 2009 [3]. Ainsi, le LRC dispose d'une base de données de mesures de tritium libre (HTO) et organiquement lié (TOL ou OBT en anglais) dans 91 organismes marins prélevés en Manche entre 2000 et 2009. Les résultats de ces analyses sont synthétisés dans le tableau 1.

Tableau 1 : Synthèse des analyses en OBT et HTO dans 91 organismes marins prélevés en Manche entre 2000 et 2009

Organismes marins	Nombre d'échantillons	HTO (en Bq/L)		TOL (en Bq/L)		Rapport TOL/HTO
		min	max	min	max	
Algues	57	1,4	12,1	2,0	12,5	1,6±0,8
Crustacés	6	3,0	12,5	3,1	16,0	1,2±0,8
Echinodermes	1	*	2,5	*	9,7	3,9
Mollusques	15	2,4	19,3	4,2	14,2	1,0±0,5
Poissons	12	2,5	14,0	4,2	13,8	1,7±1,3

L'ensemble de ces mesures indique que le rapport TOL/HTO est égal à $1,6 \pm 0,8$. L'IRSN conclut qu'actuellement, il n'y a pas d'indice de rejets de molécules marquées avec un rapport isotopique supérieur à celui de HTO en Manche.

L'étude du comportement du tritium dans l'environnement par l'IRSN conduit à considérer que le tritium, sous forme de molécules d'eau tritiée (HTO), ne suit pas un processus d'accumulation dans les organismes vivants ou tout autre compartiment de l'environnement. Un processus d'accumulation correspond plutôt à une concentration sélective d'une substance dans un compartiment de l'environnement comme ceci est observable pour le PCB par exemple. Or, l'observation du tritium dans l'environnement répondrait davantage à un processus de rémanence ou de persistance du tritium incorporé dans la matière organique des espèces notamment par le processus de la photosynthèse. En ce sens, le tritium suit le cycle de l'hydrogène [4]. Les molécules d'eau tritiée de l'eau de constitution des espèces vivantes s'échangent rapidement en fonction des variations de concentration de HTO dans l'eau de mer alors que les molécules organiques qui ont incorporé du tritium ont des vitesses de renouvellement beaucoup plus lentes.

La formule pourrait être inversée pour Stuart Jenkinson du CEFAS [5] comme l'ACRO (Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest) l'avait souligné au travers de différentes communications notamment lors du colloque sur le tritium organisé par l'ANCCLI le 10

¹ <http://www.acro.eu.org>

² Logiciel utilisé pour l'évaluation de l'impact dosimétrique sur les populations riveraines autour de La Hague issu des travaux du GRNC (Groupe Radioécologie Nord-Cotentin) et développé conjointement par l'IRSN et AREVA NC.

décembre 2008. Cette inversion n'est pas surprenante pour l'usine d'Amersham qui rejette dans la baie de Cardiff environ 30 % du tritium sous forme organiquement liée (acides aminés, lipides, hydrates de carbone) avec des rapports isotopiques élevés T/H. On observe alors 90 à 95 % de TOL (OBT) dans les poissons benthiques et les mollusques filtreurs avec des concentrations élevées de l'ordre de 1500 Bq/kg et quelques échantillons au-dessus de 50 000 Bq/kg, surtout pour les espèces en relation avec la matière organique des sédiments. Par contre, Stuart Jenkinson décrit une situation inexplicable près de Sellafield où malgré les rejets de tritium sous forme libre (HTO), on relève des concentrations importantes de TOL dans les poissons plats (plies) et les moules, mais beaucoup moins élevés qu'à Cardiff, de l'ordre de 50 à 150 Bq/kg représentant 80 à 90 % du tritium dans les poissons et les coquillages. Différentes hypothèses ont été suggérées par Stuart Jenkinson pour expliquer ces résultats : formation possible de complexes organiques antérieurs aux rejets et/ou formation possible de complexes organiques dans l'environnement marin (comme ceci a été proposé dans une publication de Turner et al en 2009 dans J. Environ. Rad. 100(10)). Il a souligné également le fait que les niveaux observés dans les organismes marins étaient proches des limites de détection de la technique d'analyse utilisée au CEFAS, ce qui rend difficile l'interprétation des mesures. Tous ces résultats sont publiés dans les rapports RIFE (CEFAS 2008). Il ressort de cette présentation du CEFAS qu'il est nécessaire de considérer ces résultats avec beaucoup de prudence dans la mesure où ces résultats ont avant tout des objectifs de surveillance radiologique de l'environnement et n'apparaissent pas adaptés à des fins d'expertise dont relèvent les discussions sur ce sujet.

On notera par ailleurs que le RSC (Radioactive Substances Committee) d'OSPAR s'accorde sur le fait que le tritium a un coefficient de dose très bas, il présente donc une très faible radiotoxicité pour l'homme et une radiotoxicité intrinsèquement faible pour le biote. De plus, le tritium n'est pas considéré comme « pertinent pour le milieu vivant », car « il ne semble pas que le milieu vivant marin soit capable de le bioaccumuler (à l'exception des composés de ^3H organique) » [6].

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Groupe Radioécologie Nord-Cotentin (GRNC), Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses présentées dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement d'AREVA NC La Hague 2005, rapport de synthèse et rapport détaillé. mai 2007
- [2] Analyse critique des données disponibles de carbone 14 et de tritium dans le Nord Cotentin et en Manche, D. Maro, M. Masson *et al.*, IRSN DEI/SECRE/-006
- [3] Le tritium en Manche, M. Masson *et al.*, Communication journées SFRP sur le tritium des 23 et 24 septembre 2009, IRSN DEI/SECRE/LRC et GEA
- [4] Impact de l'industrie nucléaire sur les espèces marines, B. Fievet, Communication colloque inter-CLI, à Cherbourg le 27 avril 2009, IRSN DEI/SECRE/LRC
- [5] Tritium in British coastal waters, A review of UK monitoring, Stuart Jenkinson, Radiological and Chemical Risk Group, Centre for Environment, Fisheries and Aquaculture Science (CEFAS – Lowestoft, UK), Communication journées SFRP sur le tritium des 23 et 24 septembre 2009
- [6] Third periodic evaluation of progress towards the objective of the Radioactive Substances Strategy, OSPAR, publication number 455/2009, 2009

Gestion des rejets de tritium du site AREVA NC de La Hague, impact et surveillance associés

Patrick Devin ¹, Hervé Deguette ²

¹ Direction Santé Sécurité Environnement, AREVA

² Surveillance Radiologique de l'environnement, AREVA NC de La Hague

Bien que le tritium apparaisse probablement comme l'un des radionucléides qui a été le plus étudié comme l'illustre notamment le livre de l'IPSN en référence [1], des questions sont encore soulevées en particulier sur son comportement dans l'environnement et dans les organismes vivants et les risques associés selon sa forme chimique. D'un point de vue sanitaire, il faut relativiser les risques du tritium dans la mesure où les observations disponibles, tant expérimentales qu'épidémiologiques contribuent à confirmer la faible radiotoxicité du tritium vis-à-vis des effets cancérogènes [2], voire ne remettent pas en cause l'Efficacité Biologique Relative (EBR)¹ du tritium [3].

L'usine AREVA NC de La Hague étant amenée à rejeter ce radionucléide, principalement dans le milieu marin, l'objet de cet article est d'analyser le comportement du tritium dans le combustible, sa présence dans l'usine de traitement et dans les rejets, l'impact de ces rejets et la surveillance du tritium qui est réalisée dans l'environnement. Des éléments d'expertise des voies de réduction des rejets sont également présentés.

1 | L'établissement AREVA NC de La Hague

La vocation de l'établissement AREVA NC de La Hague est de traiter les combustibles nucléaires usés, c'est-à-dire ceux sortant des réacteurs de production d'électricité, afin de récupérer les matières recyclables. En effet, une fois déchargé du réacteur, le combustible contient encore des matières réutilisables (environ 95 % d'uranium et 1 % de plutonium) et des résidus non valorisables (environ 4 % de produits de fission et actinides mineurs qui constituent les déchets). Le traitement-recyclage consiste donc à séparer l'uranium, le plutonium et les déchets, puis à conditionner ces derniers sous une forme stable. Ceci permet d'utiliser au mieux la valeur énergétique contenue dans les combustibles dits usés pour économiser les ressources en matières énergétiques naturelles, tout en réduisant le volume et la toxicité des déchets résiduels.

L'établissement AREVA NC de La Hague est aujourd'hui le premier site de traitement industriel de combustibles usés au monde. En France, le recyclage des matières récupérées (uranium et plutonium) permet d'économiser jusqu'à 30 % des besoins en uranium naturel. Par comparaison, la production d'électricité effectuée grâce à ce recyclage demanderait, par la voie thermique classique, la combustion de 30 millions de tonnes de charbon. Le traitement/recyclage contribue donc de manière importante à la réduction des gaz à effet de serre, menace croissante pour l'environnement mondial.



Pour assurer cette activité, l'établissement AREVA NC de La Hague exploite deux usines de production : UP2-800 (INB 117) mise en actif en 1994 et UP3 (INB 116) mise en actif en 1990. Les capacités de traitement sont de 1 000 tonnes par an pour chaque usine, avec une capacité de traitement réglementaire totale de l'établissement de 1 700 tonnes par an.

En 2008, l'établissement a assuré le traitement de 937 tonnes de combustibles usés, 946 tonnes en 2007 et 1015 tonnes en 2006.

Comme toute activité d'origine anthropique et en particulier industrielle, l'établissement est amené à effectuer des rejets. Ces rejets d'effluents liquides et gazeux sont réalisés dans un cadre réglementaire très précis.

Depuis la mise en exploitation des installations, des améliorations continues ont été apportées afin d'optimiser la gestion des effluents liquides et réduire au maximum l'impact des rejets dans l'environnement. Cette réduction progressive de l'impact des rejets des installations d'AREVA NC s'est faite au fil du démarrage de nouvelles installations, construites en remplacement d'installations plus anciennes pour répondre au besoin d'un accroissement des capacités de production.

Pour ce qui concerne les effluents radioactifs liquides, qui sont essentiellement constitués de toutes les solutions de lavage, rinçage, décontamination provenant des unités chimiques du traitement, une nouvelle station de traitement des effluents, dénommée STE3, a été mise en service en 1987, puis durant les années 1992-1996, un nouveau système de gestion des effluents liquides (Nouvelle Gestion des Effluents liquides, NGE) a été mis en œuvre avec pour objectif de réduire le volume des effluents à traiter dans l'installation STE3, celui des déchets solides associés et le niveau d'activité des eaux résiduaires issues du procédé.

L'arrêté d'Autorisation de Rejets et de Prélèvements d'Eau (ARPE) de l'établissement AREVA NC La Hague de 2003, révisé en 2007 traduit explicitement cette démarche.

Dans le cas du tritium, l'impact potentiel est considérablement réduit s'il est rejeté en mer plutôt que dans l'atmosphère compte tenu des conditions de dispersion et de dilution autour de La Hague (impact d'un rejet gazeux 1000 fois plus important que l'impact d'un rejet liquide à quantité égale). Cette problématique a été prise en compte dès la conception de l'installation. C'est pourquoi les traitements effectués sur les gaz de dissolution orientent plus de 99% du tritium vers les rejets liquides.

¹ EBR = Rapport entre une dose d'un rayonnement à faible TEL (Transfert d'Énergie Linéique) et une dose du rayonnement considéré qui donne le même effet biologique. Les valeurs de l'EBR varient selon la dose, le débit de dose et l'effet biologique considéré. Dans le domaine de la protection radiologique, l'EBR pour les effets stochastiques dus à de faibles doses (EBRM) présente un intérêt particulier.

Dans cette configuration, le tritium contribue à hauteur de 0,1 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ à l'impact dosimétrique annuel de La Hague qui est de l'ordre de 10 μSv à 20 μSv . Cette option constitue aujourd'hui l'optimum entre les critères de faisabilité technique, de sûreté, de protection des travailleurs et des riverains et de pertinence économique. AREVA NC étudie cependant d'autres possibilités qui pourraient consister à isoler le tritium afin d'en constituer un déchet.

2 | Rejets de tritium de l'établissement AREVA NC de La Hague

Pour mémoire, le tritium est un radionucléide naturel que l'on trouve notamment dans l'eau de mer à hauteur de 0,2 Bq/L. Sa période de décroissance radioactive est de 12,35 ans. C'est un émetteur bêta pur qui se désintègre en hélium. Il en disparaît chaque année naturellement 5,6 % pour former de l'hélium [4]. Le tritium existe sous différentes formes chimiques : eau tritiée (HTO), tritium gazeux (HT) et tritium lié à la matière organique (OBT²).

2|1 | Le tritium dans le combustible irradié

Lors de la fission, l'uranium et le plutonium, formé ou préexistant, se scindent en 2 éléments de masses inégales. Cette fission s'accompagne de l'émission d'un ou plusieurs neutrons qui entretiennent la réaction en chaîne et d'un dégagement d'énergie correspondant à la perte de masse. Néanmoins, dans environ 1 cas sur 10 000, la fission conduit à la formation de trois noyaux, dont un noyau léger de tritium (fission ternaire directe) ou d'hélium-3, qui par capture neutronique suivie d'une désintégration conduit à la formation de tritium.

D'après le code d'évaluation des quantités de radionucléides dans les combustibles irradiés (CESAR version 4) développé par le CEA, dans un combustible irradié à 33 000 MWj/t, la production de tritium se répartit comme suit :

- fission ternaire directe (82,5%),
- fission ternaire indirecte et activation d'éléments légers : formation via l'hélium-6 puis le lithium-6, (11,5%),
- capture électronique suivie d'une désintégration conduisant à la formation de tritium : formation via l'hélium 3 (5%) et l'oxygène 16 (1%).

Dans les conditions de température et de pression de fonctionnement des réacteurs nucléaires, le tritium produit dans les éléments de combustible est essentiellement sous forme de gaz dissous qui a tendance à diffuser vers la périphérie de l'oxyde du combustible i.e. du crayon combustible et à s'accumuler dans le jeu entre l'oxyde et la gaine. Il diffuse alors vers la gaine où il se retrouve piégé sous forme de gaz dissous jusqu'à saturation du zirconium et formation d'hydrures métalliques. Ce phénomène est limité par la faible diffusivité du tritium dans la gaine et la formation de couches d'oxyde de zirconium (zircone) sur les parois interne et externe de la gaine qui limitent le relâchement de tritium dans le circuit primaire.

La répartition du tritium entre le combustible et la gaine dépend notamment du taux de combustion, de la vitesse de formation de la couche d'oxyde interne, du type de combustible, du réacteur. Il s'agit d'un phénomène complexe qui a été évalué à travers diverses actions. Initialement, l'analyse de coques en 1986 (tronçons de gaines d'assemblage combustible découpés lors du traitement du combustible usé) issues d'éléments combustibles irradiés à moins de 33 000 MWj/t avait conduit à une valeur comprise entre 60 et 70% du tritium produit présent dans ces coques. Cette valeur a été prise en compte lors de la conception de l'usine

UP3. L'évolution des rejets annuels de tritium dans les effluents liquides de l'établissement AREVA NC de La Hague entre 1995 et 2007 montre une tendance inverse : la comparaison des rejets aux valeurs calculées à l'aide de CESAR version 4 font état d'une fraction dans l'oxyde supérieure à 60% et pouvant atteindre plus de 80%.

2|2 | Comportement du tritium lors du traitement du combustible usé : stratégie de gestion des rejets de tritium

Après cisailage et dissolution du combustible, le tritium contenu dans le gainage reste piégé dans les coques destinées à être compactées et conditionnées, après lavage, pour constituer un déchet solide.

La fraction du tritium contenue dans l'oxyde du combustible (non piégé dans les gaines du combustible) est quant à lui libéré lors de l'opération de dissolution. Le tritium est ensuite rejeté en mer principalement dans les eaux dites « tritiées » (environ 99,5 %) épurées des autres éléments radioactifs que le tritium. Une infime partie de ce tritium, compte tenu des propriétés de diffusion de cet élément, est rejeté sous forme gazeuse à partir de la ventilation du procédé de traitement (environ 0,5 %).

Les installations de traitement AREVA NC de La Hague ont été conçues de façon à confiner le tritium dans une zone restreinte de l'usine appelée zone tritiée et de le canaliser pour son rejet en mer. Les objectifs suivis étaient :

- d'une part, de simplifier la manipulation d'acide nitrique recyclé dans la zone non tritiée³ et de limiter le risque de contamination des travailleurs à la zone tritiée,
- d'autre part, de réduire au maximum les rejets de tritium dans les effluents gazeux et de favoriser les rejets de tritium dans les effluents liquides afin de bénéficier de l'importante réduction de l'impact permise par la dilution dans le milieu marin (gain dosimétrique de l'ordre de 5300 pour la population de référence des agriculteurs de Digulleville, et de 440 pour la population de référence des pêcheurs de Goury).

Cette stratégie de gestion du tritium est présentée dans le plan national soumis par la France à la Convention OSPAR pour la protection du milieu marin de l'Atlantique Nord-est dans le cadre du Programme détaillé de mise en œuvre de la Stratégie OSPAR visant les substances radioactives qui précise : « Le tritium est un radionucléide pratiquement impossible à piéger. C'est un émetteur bêta de faible énergie et de très faible radiotoxicité. Il est donc estimé que le tritium doit être prioritairement rejeté dans les effluents liquides ». A l'issue des travaux de l'ICG (Intersessional Correspondence Group) Brème, le Comité de Substances Radioactives a établi un consensus sur les points suivants notamment : d'une part, il n'existe actuellement pas de « faisabilité technique » pour une réduction à l'échelle industrielle dans les effluents liquides provenant des centrales nucléaires et des usines de traitement et d'autre part qu'il était nécessaire de conduire un examen périodique de l'élaboration des techniques de réduction des rejets [5].

2|3 | Evolution des rejets de tritium

En 2008, 99,5% du rejet de tritium est sous forme liquide (8,19.103 TBq) et 0,5% sous forme gazeuse (46,4 TBq). Les limites réglementaires fixées par l'arrêté d'autorisation de prélèvements d'eau et de rejets pour le site nucléaire de La Hague sont rappelées dans le tableau 1.

² OBT = Organically Bounded Tritium. Tritium intégré de manière covalente dans les molécules organiques.

³ Lors des opérations de dissolution dans l'acide nitrique et d'extraction en phase solvant, le tritium contenu dans le combustible reste principalement dans la phase liquide aqueuse contenant les produits de fission (sous la forme HTO, TNO). L'essentiel du tritium est confiné dans une seule partie de l'usine correspondant à la tête d'usine et aux unités de concentration des produits de fission. Cette quantité est réduite au maximum en lavant le solvant avec une solution nitrique diluée préparée à partir d'eau non tritiée. Ainsi, la majorité du tritium est confinée dans une seule partie de l'usine correspondant à la tête d'usine et aux unités de concentration des produits de fission. Lors de cette dernière opération, le tritium se répartit comme l'eau et est retrouvé principalement dans les distillats d'évaporation (eaux tritiées).

Tableau 1 : unités réglementaires

Evolution des autorisations annuelles de rejets de tritium et impact annuel aux limites autorisées	Limites fixées par les arrêtés de 1984	Limites fixées par l'arrêté du 10 janvier 2003 puis du 8 janvier 2007 modifiant l'arrêté de 1984
Rejets gazeux Impact dosimétrique Digulleville	2 200 TBq (6g) 2,4 μ Sv	150 TBq (0,4g) 0,165 μ Sv
Rejets liquides Impact dosimétrique Digulleville	37 000 TBq (104 g) 0,008 μ Sv	18 500 TBq (52 g) 0,004 μ Sv

L'évolution des rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux est présentée sur les figures 1 et 2. Les valeurs maximales ont été enregistrées en 2004 pour les rejets liquides ($13,9 \cdot 10^3$ TBq soit environ 39 grammes) et en 1995 pour les rejets gazeux (84 TBq soit environ 0,2 gramme).

Figure 1. Evolution des rejets de tritium dans les effluents gazeux des usines AREVA NC de La Hague

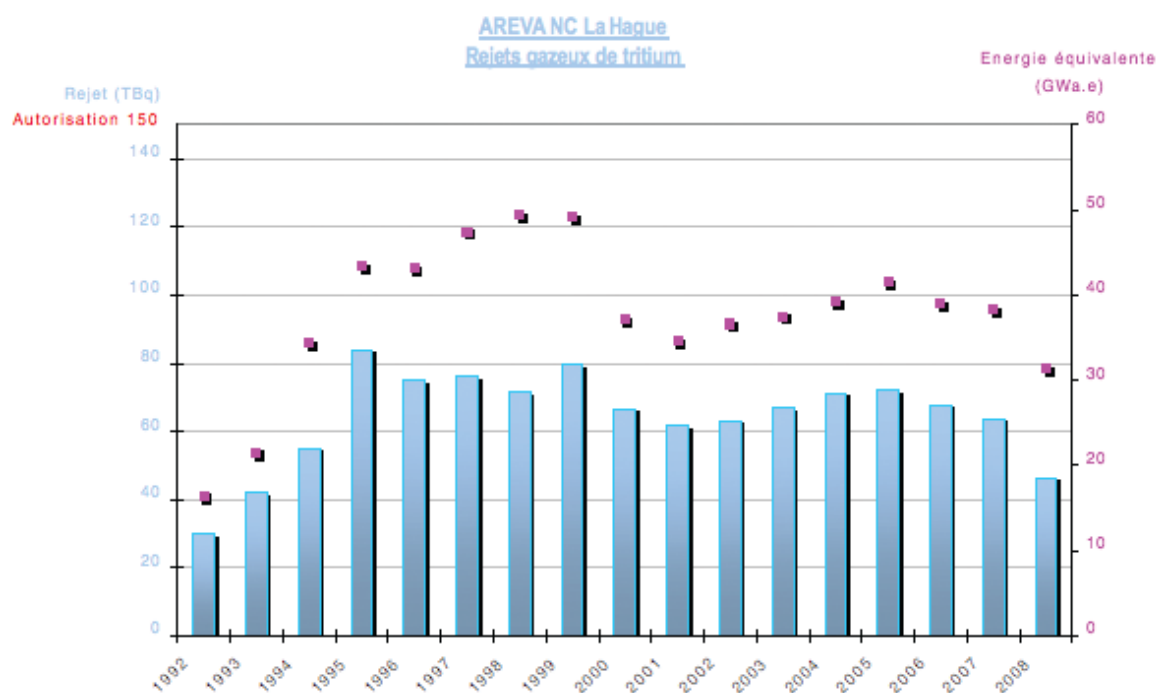
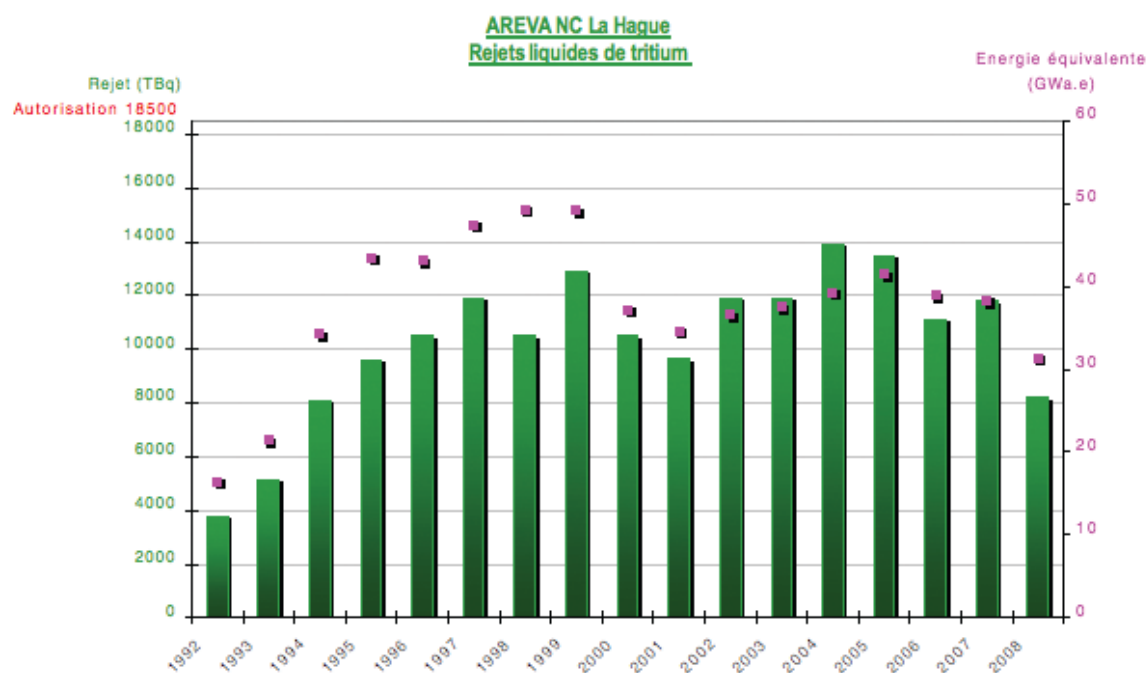


Figure 2. Evolution des rejets de tritium dans les effluents liquides des usines AREVA NC de La Hague



L'évolution des rejets de tritium est en première approximation comparable à celle de l'énergie équivalente correspondant aux combustibles traités (service rendu par les combustibles usés). On constate néanmoins que les rejets de tritium dans la période 2000-2008 sont comparables à ceux de la période 1992-1999 alors que le tonnage traité a été significativement diminué (non représenté sur les figures). Cette évolution est liée à l'augmentation du taux de combustion des combustibles traités. Ceci est confirmé par les calculs d'évolution réalisés à partir de la version 5 de CESAR qui prend en compte les fissions ternaires indirectes par l'hélium 6 et qui montrent que l'évolution du tritium par rapport au taux de combustion est non linéaire.

2|4| Mesure de l'activité tritium dans les effluents

Concernant les effluents liquides, chaque cuve d'effluent à rejeter en mer fait l'objet d'analyses pour permettre l'autorisation des rejets en mer et les bilans mensuels réglementaires. Le tritium est majoritairement sous forme d'eau tritiée HTO (environ 38 g de tritium, soit 250 g de HTO dans 40 000 t d'eau : dilution 1/160 000 000). La mesure de l'activité du tritium est effectuée pour chaque rejet d'effluents susceptibles d'en contenir. Cette mesure est réalisée par scintillation liquide à partir d'un mélange de l'échantillon représentatif, dilué ou distillé, avec du liquide scintillant.

Les gaz libérés lors des opérations de cisailage et de dissolution passent dans différentes colonnes de recombinaison et de lavage puis sont filtrés avant rejet. La radioactivité résiduelle rejetée sous forme de gaz transite par les émissaires qui font l'objet d'une surveillance en temps réel et des prélèvements en continu analysés au laboratoire. Le tritium contenu dans les effluents gazeux est piégé pour mesures et bilans dans 4 barboteurs en série remplis d'eau distillée. Le contenu des quatre pots des barboteurs en place, prélevé par période (1 au 7, 8 au 14, 15 au 21 et 22 au dernier jour du mois), permet la mesure de l'activité par scintillation liquide. La vapeur d'eau tritiée (HTO) ainsi que le gaz tritium (HT) oxydé à l'aide d'un four sont ainsi mesurés (Figure 3).

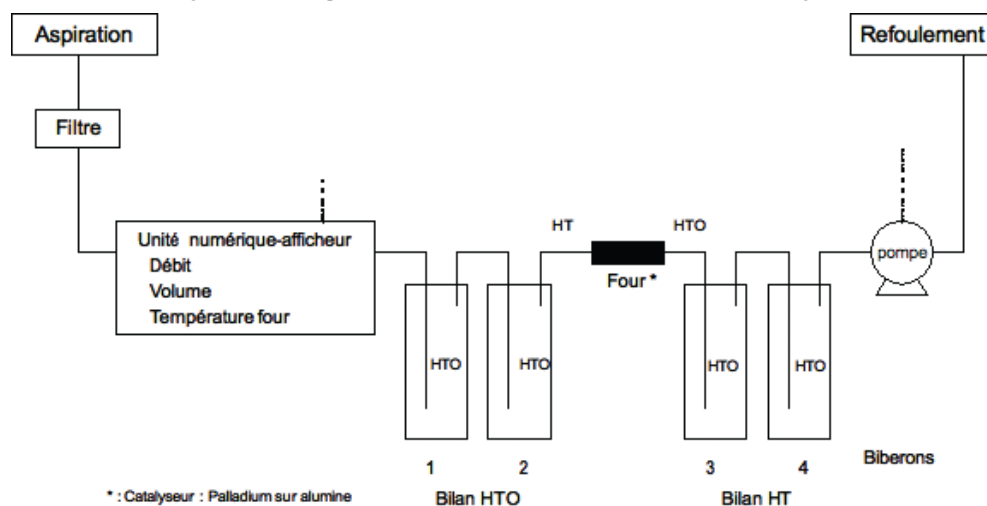
bilan des modifications et de leurs conséquences sur les rejets ».

Afin de réduire l'impact des rejets de tritium dans l'environnement, une possibilité consisterait à piéger, immobiliser et conditionner sous une forme appropriée le tritium présent dans les effluents liquides en vue d'un entreposage (immobilisation temporaire permettant la décroissance du tritium) ou stockage (immobilisation définitive sous forme de déchet ultime). L'importante dilution du tritium dans les effluents tritiés du site de La Hague (dilution massique 1/160 000 000) excluant un conditionnement direct, une opération de concentration préalable serait à envisager (distillation isotopique) mais l'ordre de grandeur de l'installation requise reste très important et énergivore. Une autre possibilité serait d'éviter la production d'effluents tritiés ou de les réduire à une très faible quantité. Toutefois, ceci ne serait envisageable qu'en prenant en compte des concepts technologiques (voloxydation, pyrométallurgie) qui sont encore à l'état de développement et qui par ailleurs, seraient difficilement transposables sur une installation existante.

Dans le cas d'une usine de traitement du combustible usé, les difficultés liées à la récupération du tritium rejeté sont donc encore amplifiées par la forte dilution du tritium dans les effluents à traiter. Ceci explique qu'aucune usine de traitement (La Hague, Thorp, Rokkasho, Tokai) ne mette en œuvre à échelle industrielle un procédé de récupération du tritium dans les effluents liquides.

Il ressort à ce jour de ces analyses que la mise en œuvre de tout procédé de concentration et de récupération du tritium conduirait également à une probable augmentation des rejets gazeux donc de l'impact dosimétrique, à exposer les travailleurs lors des travaux de modification des usines et lors de l'exploitation de l'unité, à l'entreposage des solutions ou des déchets tritiés produits. Enfin, on peut ajouter que les coûts qui seraient associés à la mise en place d'une de ces technologies, en admettant une maturité industrielle suffisante, seraient considérables.

Figure 3. Etude des possibilités de réduction des rejets tritium des usines de La Hague



Malgré un impact dosimétrique du tritium insignifiant (< 1 % de l'impact total) et bien que les rejets d'effluents tritiés en mer soient aujourd'hui la meilleure gestion de ces rejets, AREVA NC a évalué, dans une démarche de progrès continu, des voies de réduction de ces rejets notamment dans le cadre de l'article 42 de l'arrêté d'autorisation de rejets de La Hague.

Cet article précise notamment : «L'exploitant devra adresser dans un délai de trois années à compter de la publication du présent arrêté et ensuite tous les quatre ans une étude technico-économique visant à réduire ses rejets tant chimiques que radiologiques. Cette étude sera notamment basée sur une comparaison des techniques utilisées avec les meilleures technologies disponibles à un coût raisonnable et sera accompagnée d'un

3| Impact dosimétrique du tritium sur les populations riveraines autour du site de La Hague

L'impact dosimétrique sur les populations riveraines autour de La Hague est estimé à partir du logiciel ACADIE issu des travaux du GRNC (Groupe Radioécologie Nord-Cotentin) et développé conjointement par l'IRSN et AREVA NC.

L'impact dosimétrique annuel du tritium sur les groupes de référence de Goury (groupe de référence marin) et Digulleville (groupe de référence terrestre) est inférieur à 0,1 µSv/an, soit moins de 1 % de l'impact total lui-même de l'ordre de 10 à 20 µSv comparable à moins de deux journées d'exposition à la radioactivité naturelle. Cette estimation est soumise à l'appréciation du groupe radioécologie Nord-Cotentin (GRNC) dont l'avis est rendu public et est présenté à la CLI de La Hague. Le GRNC est un groupe d'expertise pluraliste constitué d'experts d'origines et de domaines de compétences divers (Instituts, ONG, experts étrangers, industriels). Ce travail a été réalisé sur les activités de 2003 à 2006. Cette appréciation a toujours confirmé l'ordre de grandeur des résultats présentés par AREVA NC La Hague.

Ainsi, même en prenant comme hypothèse que la radiotoxicité du tritium puisse être sous-estimée d'un facteur 2 ou plus, comme ceci est débattu actuellement, et que la part de tritium organique soit également sous-estimée autour de La Hague (ce qui conduirait à sous estimer une part de la dose ingestion d'un facteur 2) donc en admettant de façon très enveloppe que la dose due au tritium soit sous estimée d'un facteur 10, l'impact des rejets liquides et gazeux en tritium sur les groupes de référence serait de l'ordre du $\mu\text{Sv/an}$ et resterait un impact dosimétrique insignifiant autour de La Hague.

4 | Surveillance du tritium dans l'environnement

Le programme annuel de surveillance de la radioactivité de l'environnement est établi sous le contrôle de l'ASN. Il fixe les natures, fréquences, localisations et modalités techniques des mesures. Les résultats sont transmis mensuellement dans les registres réglementaires à l'ASN et depuis début 2009 au réseau national de mesures de la radioactivité de l'environnement géré par l'IRSN. Ces données sont intégrées dans le rapport annuel public présenté à la CLI de La Hague. Elles sont également présentées dans le rapport environnemental, social et sociétal de l'établissement et seront consultables par le public sur Internet en 2010 dans le cadre du réseau national de mesures de la radioactivité de l'environnement. La surveillance de l'environnement représente annuellement environ 20 000 prélèvements et 70 000 analyses. La mesure du tritium, tout milieu confondu (marin, atmosphérique, aquatique et terrestre) représente environ 8400 mesures, soit environ 12 % des mesures du programme annuel de surveillance.

Dans le milieu marin, 400 mesures de tritium libre sont réalisées par scintillation liquide sur des échantillons filtrés d'eau de mer à la côte et au large après sa filtration. Des mesures non réglementaires sont également effectuées en complément pour expertise sur des algues (fucus) en $\text{Bq/kg}_{\text{frais}}$ dont les résultats indiquent une activité de l'ordre de quelques Bq/L en tritium libre ainsi qu'en tritium lié (OBT : Organically Bounded Tritium). En parallèle, l'ACRO (Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest) qui réalise une surveillance autour du site notamment, a présenté des résultats similaires sur leur site internet (tritium libre uniquement).

Les analyses sont effectuées pour la plupart par le laboratoire environnement de l'établissement, agréé par l'ASN et également accrédité par le COFRAC (Comité Français d'Accréditation) depuis 1996 et par le laboratoire Départemental d'Analyses (LDA 50).

960 mesures de tritium dans l'air par an sont réalisées par scintillation liquide, environ 450 sur les eaux de pluie, les eaux de ruisseaux et les eaux de consommation et 1400 (réglementaires et non réglementaires) sur les eaux souterraines. 12 mesures sont également réalisées sur les végétaux aquatiques.

Enfin, et en complément de 80 mesures de tritium libre dans le lait, environ 90 mesures de tritium lié (OBT) sont réalisées sur les végétaux, les fruits et légumes, dans la viande et dans les produits fermiers. La mesure du tritium lié se fait suivant la méthode suivante : combustion de l'échantillon sec dans un four à 900°C sous flux gazeux Ar/O_2 . Récupération de la vapeur d'eau tritiée dans 2 pièges froids. Distillation de l'eau de combustion obtenue puis mesure du tritium par scintillation liquide (méthode CETAMA n°384 : « Dosage du tritium dans les matrices biologiques »).

Les activités mesurées dans l'environnement sont du même ordre de grandeur que les activités calculées par ACADIE (de l'ordre de 10 Bq/L) : en 2006, le rapport entre les valeurs calculées et les valeurs mesurées valait 0,98 dans la zone de dilution de 1 [6]. Le tritium est notamment utilisé pour valider le modèle de dispersion marine DISPRO développé par IFREMER et l'IRSN. Ce modèle est validé par l'IRSN pour AREVA NC La Hague à partir de la réalisation de plusieurs campagnes de mesures en mer.

Par ailleurs, des questions sur l'hypothèse d'une bioaccumulation du tritium et de la présence de tritium sous forme organique (OBT) dans les organismes marins ont été soulevées par les associations membres du GRNC. Ce phénomène n'est pas pris en compte par le GRNC ni dans les mesures réalisées dans le milieu marin autour de La Hague. Une étude de l'IRSN [7] concernant l'analyse critique des données disponibles de carbone 14 et de tritium dans le Nord Cotentin et en Manche a été réalisée afin d'apporter des éclairages sur ces questions. Cette étude conclut, sur la base des travaux réalisés par l'IRSN, que le facteur de concentration du tritium dans diverses espèces marines de l'écosystème de La Hague est proche de 1 contrairement à celui observé dans les écosystèmes comme ceux du chenal de Bristol (le tritium y est présent à plus de 85 % sous forme organique OBT dans les organismes) ou de Sellafield. Le GRNC a pris note de cette étude et poursuivra ses réflexions en intégrant notamment les résultats des travaux réalisés dans le cadre du groupe de réflexion créé par l'ASN en 2008 sur la bioaccumulation et les effets du tritium sur les organismes vivants. On notera qu'une campagne de mesures sur le tritium organique a été réalisée par l'IRSN pour EDF dans le cadre du bilan radioécologique décennal de la CNPE de Flamanville en Nord-Cotentin de laquelle il ressort que l'activité moyenne des organismes en OBT (eau de combustion) et en HTO (eau libre) est de 10 Bq/L , que le rapport moyen OBT/HTO est de $1,1 \pm 0,3$, que l'activité moyenne de l'eau de mer étant de 10 Bq/L , le facteur de concentration moyen est de 1 et enfin que le tritium est présent à plus de 85 % sous forme libre dans les organismes.

De même, le RSC (Radioactive Substances Committee) d'OSPAR s'accorde sur le fait que le tritium a un coefficient de dose très bas, il présente donc une très faible radiotoxicité pour l'homme et une radiotoxicité intrinsèquement faible pour le biote. De plus, le tritium n'est pas considéré comme « pertinent pour le milieu vivant », car « il ne semble pas que le milieu vivant marin soit capable de le bioaccumuler (à l'exception des composés de ^3H organique) » [5].

5 | Conclusion

Les rejets en mer des effluents tritiés de l'usine de La Hague apparaissent comme la meilleure option de gestion de ces effluents du fait de la forte dilution en mer ($0,76 \text{ Bq/m}^3$ par TBq/an rejeté) et d'un très faible impact dosimétrique associé ($0,1 \mu\text{Sv/an}$ pour un impact global de l'ordre de $10 \mu\text{Sv/an}$).

L'analyse de la mise en œuvre de tout procédé de concentration et de récupération du tritium dans l'objectif de réduire les rejets de tritium de l'usine de La Hague ne remet pas en cause à l'heure actuelle cette gestion.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Le tritium, de l'environnement à l'homme, coordination Y. Belot et al, livre IPSN aux éditions EDSP, 1996
- [2] Les effets sur la santé du tritium. Point des connaissances sur le tritium organiquement lié (OBT), Dr L. Lebaron-Jacobs et Dr A. Flury-Hérard (CEA/DSV) – CSSIN du 31 mai 2007
- [3] Les risques liés aux expositions au tritium sont-ils sous-évalués ? F. Paquet, H. Métivier – Radioprotection, Vol.43, n°2, 178-182, 2008
- [4] Plaque SFRP : « le tritium et son environnement », janvier 2002
- [5] Third periodic evaluation of progress towards the objective of the Radioactive Substances Strategy, OSPAR, publication number 455/2009 (2009)
- [6] Groupe Radioécologie Nord-Cotentin (GRNC), Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses présentées dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement d'AREVA-NC La Hague 2005, rapport de synthèse et rapport détaillé, mai 2007
- [7] Analyse critique des données disponibles de carbone 14 et de tritium dans le Nord Cotentin et en Manche, D. Maro, M. Masson et al. - IRSN DEI/SECRE/-006Avertissement

Connaissance des transferts de l'eau tritiée atmosphérique dans les différents compartiments de l'environnement

Apports de la surveillance du centre CEA-Valduc

P. Guétat¹, A. Tognelli², L. Vichot¹

¹ UMR CEA E4, VALDUC

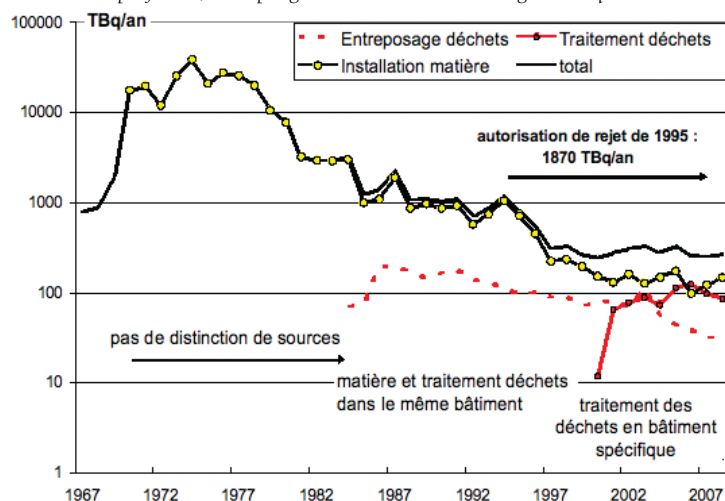
² CEA, Bruyères le Chatel

Introduction

Le Centre de Valduc se situe en région Bourgogne, Côte d'Or (21), à environ 30 km au nord-ouest de Dijon, sur le plateau de Langres, à une altitude d'environ 450 m.

Acquis en 1957, il abrite aujourd'hui, entre autres, des installations « tritium » qui concernent le traitement, la purification du tritium et son conditionnement, le traitement des déchets tritiés, et leur entreposage. Seules ces installations sont génératrices de rejets atmosphériques conduisant à un marquage mesurable de l'environnement. Ceux-ci sont passés d'environ 100 g/an au maximum à un peu moins de 1 g/an aujourd'hui, grâce à une réflexion portant sur la conception des installations, qui a conduit à la mise en place d'un traitement de l'air (détritiation), et d'une politique de traitement des déchets. Les rejets des installations sont essentiellement constitués d'eau tritiée. La Figure 1 présente l'évolution des rejets des origines à aujourd'hui.

Figure 1 : Evolution des rejets (échelle logarithmique) de tritium et répartition entre installation de purification, d'entreposage et de traitement de déchets (1g = 358TBq).



Les objectifs principaux de ce document sont :

- de présenter le bilan des quantités émises depuis l'origine par le centre de VALDUC, et de leur devenir dans l'environnement hydrogéologique.
- de fournir des données observées macroscopiquement in situ sur les mécanismes de transfert de l'eau entre les différents compartiments de l'environnement et la chaîne alimentaire, grâce au traceur exceptionnel que constitue l'eau tritiée et,
- de confronter les résultats de modèles mathématiques à la réalité du terrain.

1 | Données relatives à l'environnement du site

La région de Valduc est constituée par des niveaux de calcaires karstifiés séparés par un horizon marneux peu perméable épais d'une vingtaine de mètres. Cet horizon peu perméable sépare deux aquifères, un aquifère d'épaisseur moyenne de 10 mètres et qui s'écoule vers les rivières de la Douix et de l'Ignon, et un aquifère inférieur soutenu par les argiles noires du Lias. La surface d'affleurement de ce dernier est réduite aux flancs et aux fonds des vallées ce qui limite son alimentation directe par infiltration des précipitations. Il s'agit d'une nappe régionale peu affectée par la topographie, dont l'épaisseur est de 24 mètres en moyenne et utilisable comme ressource en eau.

Trois voies de communication sont possibles entre les deux nappes : les failles et rejets de faille, l'infiltration verticale à travers les marnes, et enfin la réinfiltration de l'eau, après écoulement en surface sur les marnes, dans le calcaire contenant la nappe inférieure.

D'un point de vue climatique, le climat est continental, légèrement tempéré par une influence océanique. La météorologie présente un intérêt important pour la définition des flux d'eau entrant dans le système d'une part et pour la répartition des dépôts au sol via la dispersion des effluents atmosphériques d'autre part.

La hauteur de pluie mensuelle est assez stable entre 60 et 90 L.m⁻².mois⁻¹, pour une moyenne annuelle de 850 mm.an⁻¹ sur la période 1988-2007. Il pleut environ 3 % du temps. L'évapotranspiration potentielle des végétaux a été évaluée à 667 mm.an⁻¹, ce qui conduit à un ensemble « infiltration et ruissellement » voisin de 200 mm.an⁻¹.

Les roses des vents révèlent principalement une différence entre vents de pluie venant surtout du sud ouest à l'ouest (en direction de Salives), et vents secs, assez bien répartis, avec une légère prédominance de vent du nord observée à hauteur de 10m. Les vents forts sont peu fréquents.

En moyenne mensuelle, sur la période de végétation (mai à octobre), la teneur en vapeur d'eau de l'air est de 9 g.m⁻³. L'intensité de la pluie a par ailleurs un effet sur le transfert entre les gouttes de pluie et la vapeur d'eau de l'air. Pour 78% du temps de pluie, les pluies sont d'intensité inférieure à 2,5 mm.h⁻¹.

2| Bilan hydrogéologique des transferts d'eau tritiée

Les rejets atmosphériques d'eau tritiée de VALDUC conduisent à un marquage secondaire des eaux du sol, des nappes et des cours d'eau, par les phénomènes de dépôts de vapeur d'eau et d'infiltration d'eau de pluie. Plus fort dans un rayon de quelques kilomètres autour du point d'émission le marquage s'affaiblit ensuite jusqu'à se perdre dans le bruit de fond de l'eau de l'atmosphère du globe. Le bassin versant de la Douix de Léry, sur lequel se situe le centre de VALDUC, est un système hydrauliquement fermé, qui a été suivi sur 3 décennies. Il est particulièrement intéressant d'effectuer le bilan tritium sur cette zone géographique finie.

Sur une surface de 40 km², la quantité de tritium déposée d'environ 7g (2600 TBq) et infiltrée est de l'ordre de 1% de l'activité rejetée aux cheminées, environ 700g (270000 TBq). Le bilan des entrées et sorties de tritium sur ce bassin versant met en évidence la présence d'un stock (corrigé de la décroissance radioactive en 2008) de 1,4g (500 TBq), en migration dans la roche insaturée et saturée. A titre de comparaison, le centre de VALDUC a rejeté 0,7g (250 TBq) de tritium en 2008.

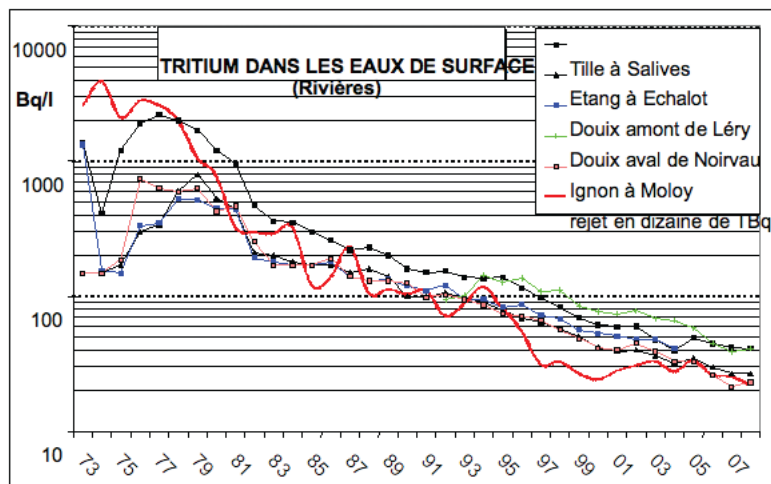
L'existence d'un stock explique le fait que la diminution des activités en tritium dans les eaux de nappe et de rivières ne suit pas rigoureusement l'évolution des rejets atmosphériques.

Sur un peu plus de 30 ans, 7% de l'activité infiltrée est ressortie du bassin versant (incluant le ruissellement et les écoulements rapides en milieu fracturé), 74% a disparu par décroissance radioactive et 19% se trouve encore dans le milieu matriciel de la roche.

On considère que le tritium traverse sous forme d'eau libre le milieu fracturé sur une durée totale comprise entre 1 et 3 ans. Par contre, dans le milieu matriciel, le complément de tritium migre lentement (environ 1 m/an), créant un stock matriciel.

La figure 2 montre l'évolution des concentrations des eaux de surface autour du site et l'évolution des rejets annuels. Toutes les activités des eaux sont, même à l'origine, en dessous du seuil de potabilité de l'OMS (10⁴ Bq/L). Les concentrations dans les deux nappes sont assez voisines, et aujourd'hui se situent entre 30 et 300 Bq/L.

Figure 2 : Evolution des concentrations en tritium des eaux de surface (échelle logarithmique).



3| Transferts entre les compartiments de la biosphère et dans la chaîne alimentaire

La figure 3 présente l'évolution mesurée du coefficient de transfert atmosphérique établissant la relation entre la concentration de l'air et le débit de rejet, en moyenne mensuelle pour les quatre stations de 2005 à 2008. Les valeurs théoriques calculées par le code Gascon utilisé au CEA sont respectivement de 7.10⁻⁸, 1.4 10⁻⁷, 9.10⁻⁸ et 6.4 10⁻⁸. On trouve ainsi une assez bonne concordance, à un facteur 2 près.

Figure 3 : Coefficients de transfert atmosphériques mesurés de 2005 à 2008. (1.00E-08 : lire 1. 10⁻⁸)

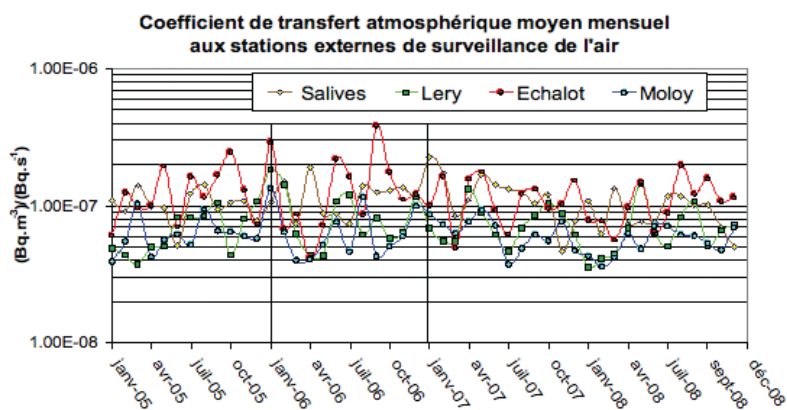
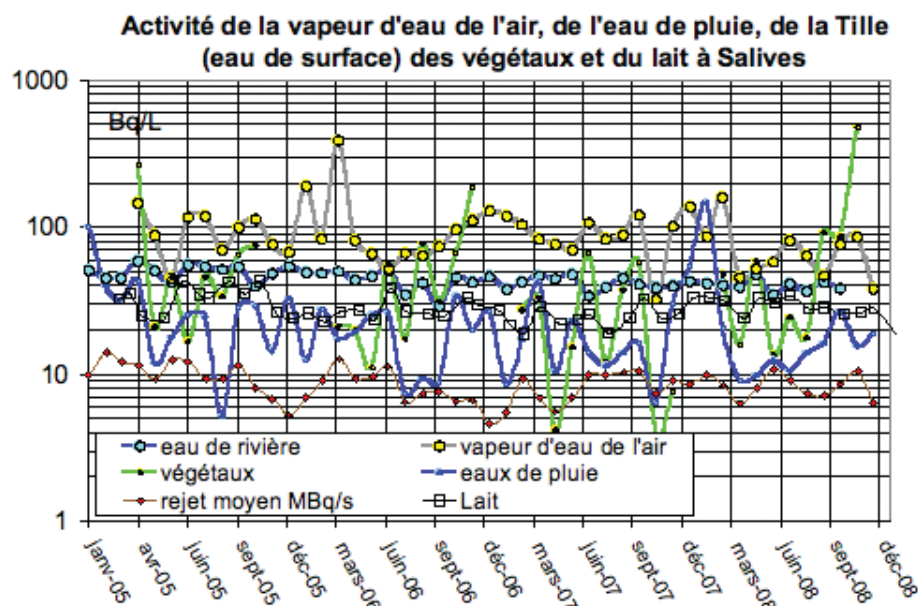


Figure 4 : activités des eaux libres de la biosphère mesurées de 2005 à 2008 à Salives (sous les vents du temps de pluie).



La figure 4 permet, sur l'exemple des données de Salives, de visualiser l'ensemble des transferts air, pluie, eaux de surface, végétal et lait. L'eau de la vapeur d'eau de l'air a, pendant la très grande majorité du temps, la concentration la plus forte. Les fluctuations sont liées principalement à la variabilité des directions de vents. L'activité de l'eau de pluie est sensiblement plus faible d'un facteur 3 à 10, ce qui est conforme aux modèles mathématiques pour l'échange entre vapeur d'eau de l'air et gouttes de pluie à ces distances. Les fluctuations sont assez importantes, la proportion de temps de pluie étant faible et la répartition en direction et intensité des vents, très inhomogène sur la semaine. L'eau libre des plantes se situe en règle générale entre les deux précédentes. L'eau de pluie semble avoir une influence assez faible dans les transferts du tritium. Ceci peut se comprendre soit par l'importance des dépôts de vapeur de l'air au sol par temps sec soit par une prédominance de la voie air - feuille. La concentration de l'eau de la Tille apparaît très stable sur toute la période et peu sensible à la pluie. Elle dépend en pratique pour une grande part de celles des eaux d'infiltration et de la nappe phréatique, d'activité plus élevée que celle de l'eau de pluie pour les raisons indiquées dans le bilan hydrogéologique précédent. Enfin, l'activité du lait apparaît cohérente avec l'activité des végétaux.

Les mesures d'eau de combustion de la matière organique (OBT en Bq/L) ne font pas partie du plan de surveillance du fait des difficultés pratiques de réalisation. Des campagnes sont cependant régulièrement réalisées souvent en parallèle avec l'association indépendante locale (Structure d'échange et d'information sur Valduc). Seules les valeurs détaillées de l'association ont été reportées ici (Figure 5), sachant que les valeurs pour l'eau libre sont généralement très voisines entre les deux entités. Les divergences éventuelles entre les mesures d'eau de combustion apparaissent sur les ratios OBT/eau libre. D'une manière générale, on constate qu'il n'y a pas de différence très significative entre eau libre et eau liée en terme de concentration. Le cas des pommes et pommes de terre mérite une itération. Dans les quelques cas où l'on peut croiser ces données avec des données de l'air ou de la pluie, on constate que la valeur concernant l'eau de combustion est relativement voisine et de celle de la vapeur d'eau de l'air, mais assez largement au dessus de l'eau de pluie.

Figure 5 : activités de divers produits alimentaires en tritium organique et eau libre de végétal.

Commune	Distance de Valduc en km	Année	Aliment ou végétal	ratio CEA	ratio SEIVA	Tritium eau libre Bq/l	OBT eau de combustion Bq/L	Vapeur d'eau de l'air Bq/L	Eau de pluie Bq/L
Salives	4	1988	Feuilles de chêne				400	425	
		1998					80	94.8	14
		2001					157	106	24
		2006					40	105	17
Le Meix	2	2001	Girolles	0.7	0.4	214	91.15		
Poiseul-les-S	9	2001		2.3	1.9	7	13.4		
Frénois sud	4	2001	Blé	0.4	0.5	142	77.34		
Salives N.E.	4	2001		0.5	2.0	19	37.16	106	24
Auxonne	35	2003	Salades	0.6	1.8	1.33	2.41		
Lamargelle	15	2003		1.6	2.8	4.17	11.58		
Salives	4	2003		1.6	1.7	31.75	52.63	59	23
Auxonne	58	2003	Poireaux	1.7	0.7	1.55	1.09		
Lamargelle	4	2003		2.6	8.1	2.98	24.09		
salives	5	2003		0.9	1.1	27.55	30.59	59	23
Salives	4	2004	Pommes de terre 1	0.92	4.6	33.6	155.36	87	15.6
Lamargelle	5	2004		1	5.4	6.5	34.78		
Auxonne	58	2004		0.8	4.9	1.8	8.75		
Salives	4	2004	Pommes 1	0.9	11.4	47.2	540.32	87	15.6
Grancey-	15	2004		0.89	10.5	8.9	93.36		
Arcelet	35	2004		0.94	11.2	1.6	18		
Echalot	2	2008	Carottes			15.5		61	13.9

¹ Le CEA n'a mesuré que l'eau de combustion. Les ratios présentés utilisent l'eau libre des échantillons mesurés par la SEIVA

4 | Conclusion

Bien que l'activité rejetée par Valduc soit, depuis près de 10 ans, stabilisée à un niveau désormais difficile à réduire, celles des nappes et eaux de surface ont continué à décroître, faisant apparaître ainsi le rôle et l'influence du tritium encore en stock dans la géosphère.

La comparaison mesures – modèle montre que les évaluations sont satisfaisantes, même si la multiplicité des voies ne permet pas d'affirmer avec certitude l'importance relative des phénomènes en jeu. La pluie semble avoir une influence faible pour la chaîne alimentaire. Il n'apparaît pas de différence manifeste entre les activités de l'eau de combustion et de l'eau libre, compte tenu des difficultés de mesure du tritium organique à ces faibles niveaux.



Apports de la modélisation sur la compréhension des transferts du tritium dans la biosphère et conséquences pratiques en cas de rejet accidentel

Philippe Guétat - CEA, VALDUC

Extrait de Radioprotection : 2008-Vol43 n°4

Abstract

This document presents transfers in the biosphere compartments in normal and accidental conditions. It discusses some associated regulatory aspects.

L'hydrogène est l'un des éléments majeurs de la vie et l'eau joue un rôle important dans la régulation des conditions des milieux. De nombreux mécanismes biologiques complexes d'interaction et contrôles existent par ailleurs pour entretenir la vie et s'opposent aux fluctuations de l'environnement naturel. Selon le point de vue où l'on se place, il apparaît soit une assez grande stabilité des conditions soit une grande complexité avec un nombre important de phénomènes d'actions opposées.

Les modèles relatifs à l'hydrogène et l'eau reflètent cet état des choses et appartiennent à deux catégories : les uns concernent l'impact des rejets en fonctionnement normal plus ou moins réguliers au cours de l'année, avec des relations assez simples entre les compartiments (air, sol, plantes, animaux, homme), les autres concernent des rejets de courte durée pour lesquels il est nécessaire de disposer de nombreuses informations et d'équations élaborées.

1 | Rejets continus de fonctionnement (normaux)

L'approche la plus complète est très bien explicitée dans deux documents de l'AIEA qui ont été actualisés dans le programme EMRASS : le TRS 364 et le document technique associé (Tecdod).

Le modèle « de l'équilibre isotopique » est traditionnellement utilisé pour le tritium, et l'on considère donc que le rapport $^3\text{H}/1\text{H}$ reste

Résumé

Cet article présente les connaissances principales et les incertitudes associées sur les transferts entre compartiments de la biosphère en conditions normales et accidentelles. Il discute certains aspects réglementaires en découlant.

constant d'un compartiment à un autre. A rejet constant un certain équilibre s'établit entre l'air, la pluie, les plantes, le sol, et les animaux, les apports d'eau de pluies et d'irrigation compensant l'évapotranspiration des plantes.

Les auteurs préfèrent généralement utiliser le rapport des concentrations en tritium des eaux entre les différents compartiments. Le tritium se trouve dans l'eau libre des organismes, ou incorporé dans des molécules organiques. Suivant les liaisons chimiques considérées, il est soit facilement échangeable (E OBT échangeable bound Tritium, extrait de la matière sèche par lavage multiple à l'eau pure), soit non échangeable (NE OBT). Il est alors récupérable par combustion de la matière organique et se retrouve dans l'eau générée avec l'oxygène de l'air.

Les masses de matière sèche, d'eau libre, d'eau de combustion, et la concentration dans ces différentes eaux, sont toutes accessibles à la mesure.

Dans le passé, l'approche très simple utilisée consistait à calculer l'activité de la vapeur d'eau de l'air en un point donné et de supposer que n'importe quelle eau du sol, des plantes, ou des animaux avait la même activité (équilibre isotopique). Le calcul de dose se limitait au produit de $1,3 \text{ L.j}^{-1}$ d'eau consommée quotidiennement par l'activité volumique de la vapeur d'eau et par le facteur de dose par unité incorporée ($2.10^{-11} \text{ Sv.Bq}^{-1}$). Cette approche donne un bon ordre de grandeur. Compte tenu des quantités d'eau absorbée par chacune des trois voies d'atteinte : inhalation, passage transcutanée et ingestion, la voie principale d'exposition est nettement l'ingestion.

Pour affiner le calcul, il est nécessaire de distinguer « eau libre » et « matière organique » et d'établir la correspondance entre activité de la matière organique et activités des eaux mesurées. On définit ainsi un facteur d'« équivalent eau » pour la matière organique qui peut être déduit des teneurs en hydrogène des lipides (7%), protéines (12%) et glucides (6,2%). Pour la plupart des plantes, cette valeur est de l'ordre de 0,5 à 0,6.

Le deuxième aspect important est le fait qu'en raison de la différence de masse, il y a un facteur de discrimination entre ^1H et ^3H dans les différents transferts et les transformations biochimiques. A partir des résultats de mesures, ce facteur est de l'ordre de 0,5.

En pratique, il est encore possible d'effectuer une évaluation simple mais plus réaliste des transferts, avec l'équation suivante :

$$C_{\text{plante},fw}^{\text{total}} = [\Phi_r + 0.3(1 - \Phi_r)] \cdot [(1 - H_{\text{plante}}) \cdot W_{\text{eq}} \cdot D_p + H_{\text{plante}}] \cdot C_{\text{air},w}$$

avec Φ_{air} : humidité relative de l'air, H_{plante} : proportion massique d'eau dans la plante, W_{eq} : équivalent eau de la matière sèche, D_p : facteur de discrimination isotopique entre ^3H et ^1H , $C_{\text{air},w}$: concentration de la vapeur d'eau de l'air

Exemple : pour une humidité relative de l'air de 70%, une teneur en eau dans un légume vert de 80% et dans du blé de 20%, un W_{eq} de 0,6 et un D_p de 0,5, la relation donnerait respectivement une activité pour le légume vert égale à 2/3 de la concentration de la vapeur d'eau de l'air et une activité du blé égale à 1/3. Le tritium organique lié représente 7% du tritium total pour le légume vert et 54% dans le cas du blé. En tenant compte du fait que le facteur de dose par unité incorporée pour le tritium organique est 2,1 fois supérieur à celui de l'eau tritiée, on trouve que l'exposition ainsi calculée est d'environ 60% de celle calculée avec le modèle historique.

Dans le cas de rejets de tritium gaz (HT), le dépôt au sol est environ 10 fois plus faible que le dépôt de vapeur d'eau et il n'y a ni dépôt par la pluie ni transfert direct de l'air aux feuilles. Le dépôt (HT) est rapidement transformé dans le sol en eau HTO par les microorganismes. Commence alors les transferts précédemment mentionnés de l'eau tritiée. Sur ces bases qui sont confirmées par des expériences de terrain, l'impact de HT est de l'ordre de quelques pourcents de l'impact de l'eau tritiée HTO à activités rejetées égales.

Dans le cas de particules tritiées et tritiures métalliques, les coefficients de dose par unité inhalée peuvent être jusqu'à 30 fois supérieurs à celui de l'eau tritiée, selon la nature et la taille des particules. Cependant, les rejets de poussières en fonctionnement normal sont très faibles comparés aux rejets d'eau tritiée, en raison de l'utilisation de filtres de très haute efficacité, comme cela est illustré dans le cas d'ITER (Maubert *et al.* 2008).

En réalité, dans l'analyse des données de surveillance, il y a des fluctuations autour de ces valeurs moyennes dans les différents compartiments de l'environnement en fonction des variations de direction de vent, des variations de débits de rejet et des périodes de résidence de l'eau dans les différents compartiments. L'eau tritiée libre a une période biologique de quelques heures dans la plante. Au contraire l'OBT non échangeable se comporte comme un intégrateur sur toute la durée de croissance de l'échantillon mesuré. Le sol aura besoin de plusieurs mois pour renouveler son eau. Ces éléments qui sont pondérés dans le cas de rejets plus ou moins continus sont beaucoup plus importants dans le cas d'un rejet accidentel.

2 | Rejets de courte durée

En cas de rejet de courte durée ou accidentel, les voies d'exposition apparaissent successivement avec tout d'abord l'inhalation et dans une moindre mesure la contamination transcutanée lors du passage du nuage ; puis vient l'ingestion de légumes contaminés par la vapeur d'eau tritiée de l'air consommés dans les premiers jours après le rejet. Le tritium organiquement lié produit pendant ces premiers jours est fixé dans les plantes jusqu'à leur récolte qui vont sur plusieurs semaines. Les cultures en place fournissent ainsi l'exposition principale. Enfin la contamination des végétaux à partir de l'eau du sol complète l'exposition jusqu'à l'hiver suivant, au cours duquel il y a décontamination des sols par lixiviation. Certains organes comestibles comme les grains de céréales ou les pommes de terre sont stockés, ce qui diffère encore leur impact radiologique de quelques mois.

Les phénomènes prépondérants pour l'eau tritiée sont : l'incorporation de la vapeur d'eau de l'air par les feuilles, les dépôts au sol (sec et par la pluie) à partir de l'air contaminé, la transformation de HTO en OBT dans les feuilles, la translocation des feuilles aux fruits, aux racines et tubercules, et enfin le temps de résidence de l'eau dans le sol.

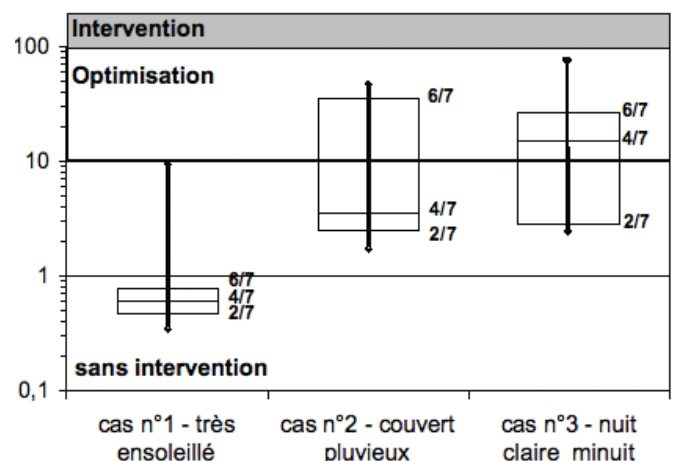
Tous ces mécanismes sont modélisés de manière plus ou moins approfondie mais il reste un réel besoin de synthétiser les différentes approches mathématiques et d'harmoniser et/ou compléter les connaissances comme on peut le voir dans les paragraphes suivants (Guétat *et al.* 2007).

Dans le cadre du programme EMRAS de l'AIEA, huit équipes ont réalisé une analyse des conséquences d'un rejet atmosphérique de courte durée de tritium (IAEA 2007) pour un rejet de 10g de tritium se produisant mi-juin, quand les plantes ont un taux de croissance maximal. Trois types de conditions météorologiques standard ont été évalués : cas n°1 = jour ensoleillé en conditions atmosphériques instables et vent de 2 m.s⁻¹ – cas n°2 = jour de pluie en conditions atmosphériques neutres, vent de 5 m.s⁻¹ et pluie de 15 millimètres – cas n°3 = nuit claire en conditions stables, vent de 2 m.s⁻¹.

En considérant l'ensemble des voies d'exposition et les trois conditions météorologiques on peut voir sur la figure 1 qu'il y a une grande variabilité des résultats, ce qui mènerait, selon l'évaluation, à une optimisation des contre-mesures à mettre en place ou au contraire à une absence complète d'intervention (ICRP 1991).

Comme dans des travaux précédents (Barry *et al.* 1999, Galleriu *et al.* 1995), la distribution des résultats varie selon les scénarios et les modèles utilisés. Les différences pour les cas de pluie et de nuit atteignent un facteur 10 ; ceci est dû en partie aux modèles de dispersion atmosphériques mais surtout à la modélisation des transferts aux aliments.

Fig. 1 : Distribution des résultats de calcul de dose efficace pour un rejet de 10g de tritium à la distance de 1 km, dans 3 types de conditions météorologiques.

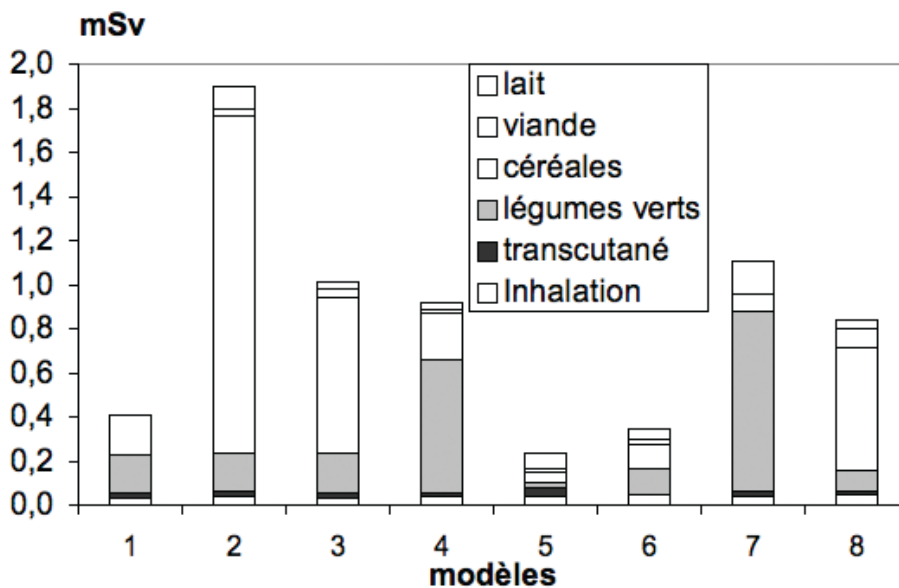


Pour mieux cibler les incertitudes provenant de la modélisation spécifique du tritium, les résultats des calculs d'exposition ont été normalisés et rapportés à une même concentration de l'air (Figure 2).

Dans tous les calculs, l'ingestion d'aliments constitue la principale contribution à la dose et l'ingestion de céréales et de légumes verts en représente la plus grande partie, leur importance relative étant variable selon le modèle utilisé. L'impact radiologique dû à l'ingestion des céréales est important : leur tritium se trouve sous forme d'OBT, et les céréales peuvent être stockés et consommés sur une période longue.

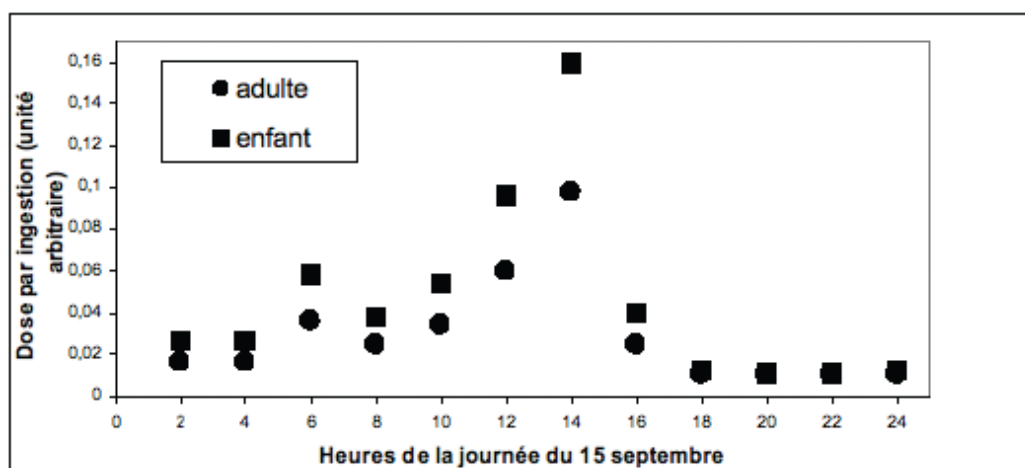
Cependant, il est très peu probable que la totalité de la ration quotidienne de céréales (ici 430g par jour) puisse être constituée uniquement de blé provenant du point au maximum de contamination en raison de la dilution dans le processus industriel de stockage des récoltes. En supposant que toutes les céréales proviennent d'un seul endroit, les modèles (de manière pessimiste) prédisent que les céréales contribuent entre 10% et environ 80% du total des expositions. Les céréales constituent clairement la source principale d'incertitude (surestimation) de ces évaluations d'exposition.

Fig. 2 : Détails des expositions par voies d'atteinte (concentration de l'air normalisé)



Pour évaluer l'impact d'un rejet de tritium, on doit non seulement connaître les caractéristiques de dispersion atmosphérique, mais on doit aussi tenir compte de paramètres influençant la photosynthèse et de paramètres agronomiques (caractéristiques des cultures et des techniques culturales). Les Figures 3 et 4 présentent des résultats cités par (Galleriu *et al* 2007) pour illustrer les influences de l'heure de la journée et de la date précise de l'accident.

Figure 3 : Variation de l'exposition en fonction de l'heure d'occurrence d'un accident un jour de septembre (unité arbitraire)



Dans ces deux études théoriques, l'auteur a dû fixer de nombreux paramètres. En réalité il y a peu de chance que l'on dispose de toutes ces informations instantanées pour avoir avec une confiance suffisante dans l'évaluation de l'impact d'un rejet accidentel.

Selon les intercomparaisons, l'influence de la pluie sur l'exposition totale est plus ou moins forte. Dans l'exercice EMRAS, cette influence est faible, mais dans d'autres études, des augmentations du dépôt, allant jusqu'à un facteur 7, sont possibles.

Dans l'exercice EMRAS, pour la plupart des modèles, la consommation de molécules marquées par le tritium (OBT), élaborées par les végétaux pendant le passage de l'air contaminé, constitue la source principale d'exposition. La voie de transfert air - plantes est dans la majorité des cas supérieure à la voie « sol - plantes ». Les modèles révèlent cependant de grandes disparités dans la contribution de l'eau du sol. Celle-ci dépend de 2 paramètres : les vitesses de dépôt et la vitesse de renouvellement de l'eau du sol arable. Cet exercice confirme qu'un rejet de tritium a un impact qui, du fait de la contamination du sol, se manifeste sur quelques mois (une saison agricole) et qu'en conséquence les calculs d'incorporation doivent être intégrés sur cette durée.

Cet exercice prouve également qu'il est nécessaire de calculer pour les cultures industrielles (blé, maïs, betteraves...), une activité moyenne à l'échelle de une à quelques parcelles (et non pas en un point) et d'être très précis sur la nature des produits consommés (blé, maïs et riz sont tous des céréales) et de leur teneur en matière sèche (la farine et le pain sont du blé). Sans cette précision, des erreurs d'un facteur 10 peuvent résulter d'un malentendu sur les données.

Les prévisions des modèles restent aujourd'hui fortement incertaines et les différences entre les modèles importantes. En particulier les connaissances sont insuffisantes en ce qui concerne la production d'OBT pendant la nuit, la dynamique des dépôts et des déplacements d'eau dans le sol, ainsi que la fraction de HTO dans les feuilles venant du sol. La figure 5 illustre ces incertitudes pour trois modèles fournissant l'évolution des concentrations en fonction du temps.

Fig. 4 : Variation de l'exposition en fonction de la date d'occurrence d'un accident au cours d'une année

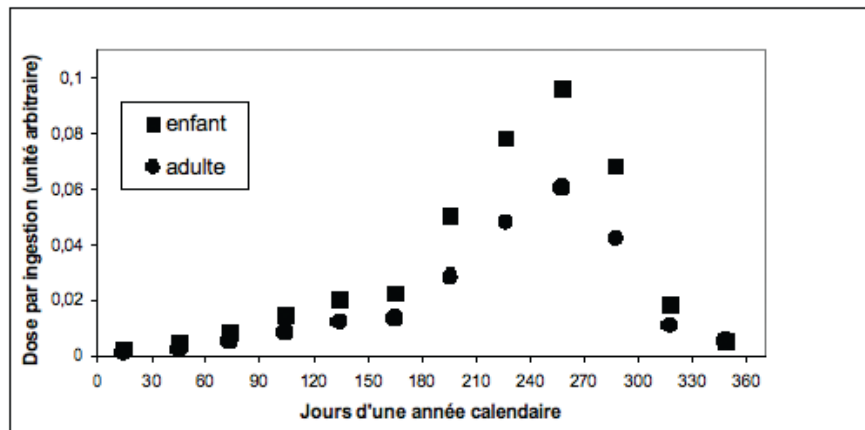
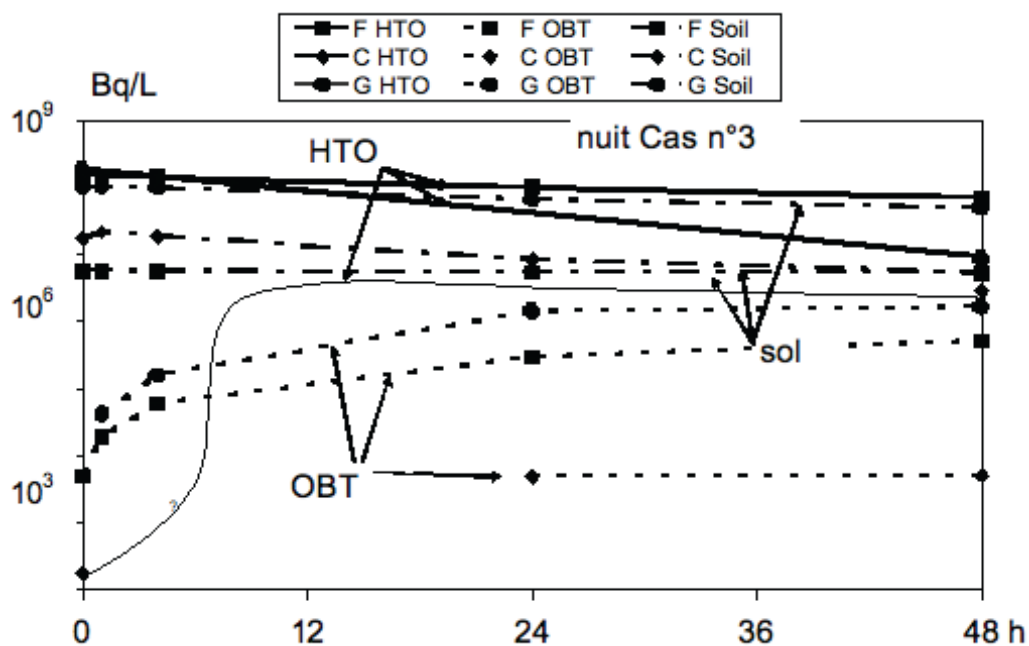


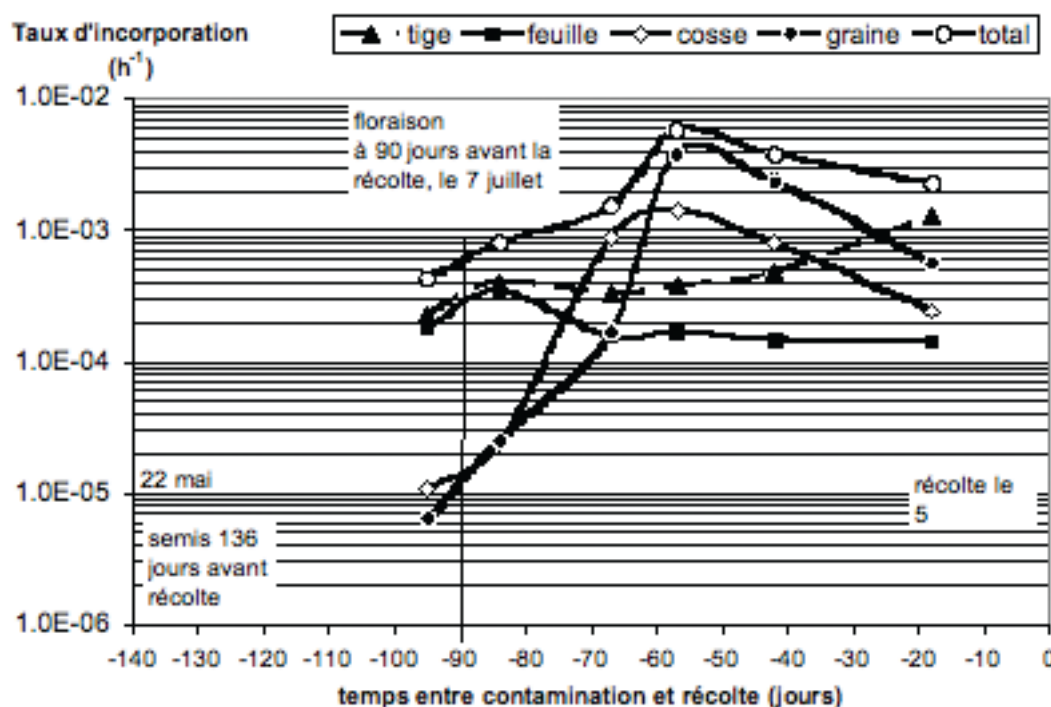
Fig. 5 : Concentration en tritium pendant les deux premiers jours dans le cas d'une contamination à minuit, pour 3 modèles.



Un autre exercice du programme EMRAS concernait une contamination expérimentale d'une culture de soja. L'évolution mesurée du taux d'incorporation de HTO en OBT entre la floraison et la récolte est présentée dans la figure 6. La variation du taux d'incorporation atteint un facteur 1000. Il est indispensable d'utiliser de telles données agronomiques pour améliorer la précision des évaluations.

Dans la plupart des documents techniques basés sur l'impact radiologique, les limites fixées ou proposées pour le tritium sont beaucoup plus élevées que pour d'autres radionucléides usuels. C'est le cas de la directive

Fig. 6 : Incorporation d'OBT à la récolte en fonction de l'instant de la contamination.



D'autres informations intéressantes sont à mentionner :

En absence d'intervention, la dose intégrée par les enfants en bas âge est sensiblement identique à celle des adultes.

Les activités massiques des produits animaux sont inférieures à celles des végétaux.

Pour un rejet de HT, l'impact est de l'ordre de 1% à 3% de celui d'un rejet d'HTO de même activité. Comme pour les rejets continus, ceci s'explique par la quasi-absence de contamination air-plantes et à une vitesse de dépôt moindre (environ d'un facteur 20) (Davis,1995).

Pour les particules, l'importance des mécanismes en jeu dans l'environnement devrait être dépendant de chaque hydrure ou matériau tritié. Si l'on dispose d'informations sur la voie inhalation (Maubert 2008), le comportement du tritium entre particules et végétaux, puis animaux et l'absorption par voie digestive apparaissent mal connus. L'usage, dans le domaine de la Santé, est de considérer des situations d'incendies avec libération total du tritium sous forme de vapeur d'eau. Cette approche correspond à la voie de libération du tritium la plus plausible sachant par ailleurs que les mises en suspension de poudre sont généralement inférieures à 1% des inventaires. On peut ainsi supposé que les scénarios retenus enveloppent le cas de mises en suspension de poudres, cependant cela reste à valider.

3| Conséquences pratiques sur les aspects réglementaires relatif au tritium.

Le tritium est un émetteur β de faible radiotoxicité, ayant une énergie moyenne par désintégration de 5,7 keV (bien plus faible que les émetteurs $\beta\gamma$ de référence ^{60}Co ^{90}Sr et ^{137}Cs ayant des énergies de l'ordre de 1 MeV), mais il peut être assez facilement mesuré dès lors qu'il est isolé.

européenne relative à la radioprotection (UE 1996), ou la norme de l'Organisation Mondiale de la Santé pour l'eau potable (OMS 2004).

Mais le plus souvent, les valeurs réglementaires se réfèrent à des groupes de radionucléides ou à des types d'émission (par exemple les émetteurs $\beta\gamma$) sans tenir compte de la radiotoxicité des éléments. Dans ce type de documents, le tritium est généralement assimilé à d'autres nucléides et par simplification se trouve ainsi pénalisé d'un facteur 10 voire souvent 100.

C'est le cas pour la limite d'activité surfacique de la réglementation du transport, et ce pourrait être également le cas pour la limite de commercialisation des

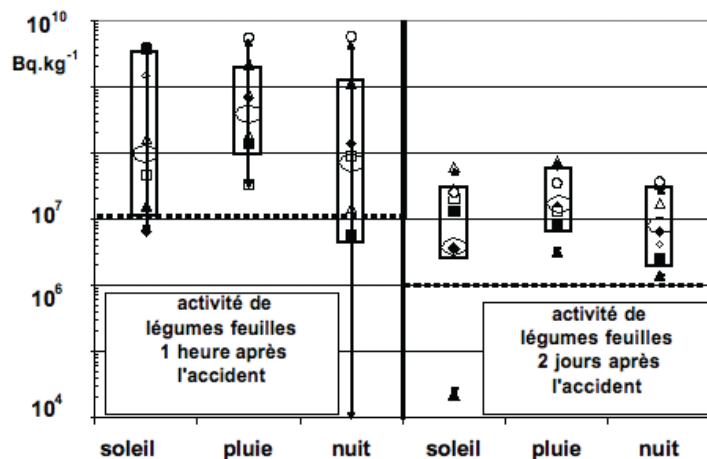
produits alimentaires après accident. Nous développerons ici ce dernier point car il n'a pas encore de caractère réglementaire.

La Commission internationale de radioprotection (ICRP 1991) retient comme référence un niveau de dose de 10mSv en un an pour des personnes vivant en autarcie. La commission du Codex Alimentarius considère de son côté une dose de 1mSv pendant une année après accident, en retenant une consommation de 650 kg.an⁻¹ et 10% de produit d'origine locale (Alinorm 2006a) ce qui reste cohérent avec l'approche de la CIRP. Cette commission a également adoptée (Alinorm 2006b) une valeur pour la commercialisation de produits alimentaires de 10³ Bq.kg⁻¹ pour les produits pour bébés et de 10⁴ Bq.kg⁻¹ pour les autres produits. On note que les doses correspondantes sont évaluées respectivement à 2 μ Sv et à 20 μ Sv, et non 1 mSv comme pour les autres radionucléides.

Dans le scénario accidentel d'EMRASS, les modélisateurs ont calculé des concentrations dans les légumes à 1h et à 48h après rejet avec les hypothèses de dose et de consommation du Codex (Figure 7). Deux résultats sont à rejeter, l'un dans le cas nocturne (n°3) pour un modèle qui ne prend pas en compte l'incorporation du tritium pendant la nuit, mais considère seulement la contamination à partir du sol au matin suivant, l'autre pour le cas diurne ensoleillé (n°1) pour la valeur calculée à 48h, le modèle ne traitant pas de la contamination du végétal par l'eau tritiée provenant du sol.

Toutes les valeurs de concentration données par les modèles se situent entre 5.10⁶ et 5.10⁹ Bq.kg⁻¹ une heure après l'accident et entre 2.10⁶ et 1.10⁸ Bq.kg⁻¹ à 48 h, pour un légume feuille frais. Ces valeurs sont indépendantes des conditions atmosphériques au moment du rejet. Elles peuvent être comparées aux recommandations de l'US-DOE 10⁷ Bq.kg⁻¹ (US.DOE 2006) ou aux niveaux d'action des directives canadiennes (3.10⁴ Bq.kg⁻¹ pour le lait et 10³ Bq.kg⁻¹ sous la forme d'OBT pour les produits alimentaires commercialisés (Health Canada 2007).

Fig. 7 : Activités des végétaux à 1 h et 48 h correspondant au critère de dose retenu pour l'établissement des limites de commercialisation (1 mSv).



4 | Conclusions

La modélisation pour les rejets en fonctionnement normal des installations a peu de chance de pouvoir s'améliorer significativement. Le travail de synthèse réalisé par l'AIEA constitue la référence (TRS 364 et TECDOC). Pour l'eau tritiée (HTO) : il y a dilution à chaque étape de la chaîne de transfert. La voie d'atteinte par ingestion de végétaux est clairement la voie dominante et ceci principalement par le transfert direct de l'air à la plante. Pour le dihydrogène HT (tritium gaz) : l'impact radiologique d'un rejet est de l'ordre de quelques pourcents de celui d'un rejet équivalent sous forme HTO. La voie de transfert principale est alors le transfert sol-plante après conversion du gaz en eau.

On se souviendra que l'eau tritiée libre des plantes fournit une information sur l'activité de l'air pendant les heures précédant le prélèvement alors que le tritium organiquement lié est au contraire un intégrateur sur les temps de croissance du végétal.

Dans le cas de rejet de courte durée (accident ou incident) et du point de vue scientifique, les principaux mécanismes régissant le comportement du tritium sont connus. Le tritium ne se concentre pas dans la chaîne alimentaire, mais peut rester dans le sol, dans les conditions climatiques françaises, pendant une saison agricole. La variabilité des évaluations d'impact demeure élevée en cas d'accident particulièrement dans le cas de rejets par temps de pluie ou la nuit. Au contraire, la relation entre la dose et la concentration en tritium de l'eau des plantes pendant les deux premiers jours est peu influencée par les conditions météorologiques et les scénarios considérés. Ceci souligne l'intérêt et la nécessité du contrôle environnemental par prélèvements de végétaux après un accident.

D'un point de vue plus pratique pour la gestion post accidentelle, on peut retenir que, bien qu'un rejet de 10 g de tritium (HTO) ait un impact radiologique faible, quelques interventions d'extension limitée au voisinage du point de rejet pourraient s'avérer nécessaires selon les conditions météorologiques et environnementales.

Un rejet de 1 kg de tritium gaz (HT) a un impact radiologique équivalent à un rejet de 10 g de tritium sous forme HTO, cependant la voie principale est alors la contamination à partir du sol.

Du point de vue de la réglementation :

- Le tritium doit être considéré indépendamment des autres éléments $\beta\gamma$ en raison de sa basse radiotoxicité, et en raison de la difficulté à le confiner.
- La limitation de 4 Bq.cm⁻², mise en place pour des $\beta\gamma$ de forte énergie (cf. Sr90) dans la réglementation des transports devrait être modifiée pour le tritium.

- Les concentrations dans les produits alimentaires recommandées par le Codex Alimentarius comme niveaux de référence pour la commercialisation des produits ne sont cohérentes ni avec les critères d'exposition retenus par ailleurs ni avec les calculs réalisés par les scientifiques dans le cadre de l'AIEA.
- En ce qui concerne l'eau de boisson, la valeur de 10⁴ Bq.L⁻¹ de l'OMS devrait être gardée comme référence. La valeur de 100 Bq.L⁻¹ n'étant qu'une valeur guide pour indiquer, en absence d'installation bien connue, la présence anormale d'une source de radioactivité, qui ne se limiterait pas nécessairement qu'au seul tritium.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ALINORM 06/29/12 Codex Alimentarius Commission report on the 38th session of the Codex Committee on food additive and contaminant The Hague Netherlands 24-28 April 2006
- ALINORM 06/29/41 Codex Alimentarius Commission 29th session Geneva Switzerland 3-7 July 2006.
- Barry P.J., Watkins B.M., Belot Y., Davis P.A., Edlund O., Galeriu D., Raskob W., Russell S., Togawa O. (1999) Intercomparison of model predictions of tritium concentrations in soil and foods following acute airborne HTO exposure. *Journal of environmental Radioactivity*, 42, 191-207
- Davis, P.A., Galeriu, D (1995) - Evolution of HTO concentrations in soil, vegetation and air during experimental chronic HT release in V Topical Meeting on Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotope Applications, Italy, May 1995 *Fusion Technology* 28, 833
- EC (1996) Council Directive 96/29/Euratom of 13 May 1996 laying down the basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers of ionising radiation. *Official Journal of European Community*, L159, European Commission
- Galeriu D., Davis Ph., Raskob W., Melintescu A. (2007) - Tritium radioecology and dosimetry – Today and tomorrow - TRITIUM 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester" - *Fusion Science and Technology*, en cours de publication
- Galeriu D., Davis P., Chouhan S., Raskob W (1995) - Uncertainty and sensitivity analysis for the environmental tritium code UFOTRI - *Fusion technology* 28, 853-858
- Guétat Ph., Patryl L (2007) - Environmental and Radiological Impact of Accidental Tritium Release - Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fusion Science and Technology*, en cours de publication.
- Health Canada (2007) - Canadian Guidelines for the Restriction of Radioactively Contaminated Food and Water Following a Nuclear Emergency.
- IAEA (2007) EMRASS - hypothetical scenario to be published Draft on <http://www-ns.iaea.org/projects/emras/emras-tritium-wg.htm>.
- ICRP (1991) ICRP publication 63. Ann ICRP 22 Pergamon Press, Oxford
- Maubert H., Di Pace L. (2008) Doses resulting from the inhalation of ITER generated tritiated dust - *Radioprotection* Vol.43, n°1, 13-22.
- OMS (2004), Organisation Mondiale de la santé Directives de qualité pour l'eau de boisson. Vol.1. Troisième édition. Genève, Suisse. http://www.who.int/water_sanitation_health/dwq/gdwq3rev/fr/index.html
- US DOE (2006) United States Department of Energy - Memorandum: Guidance on Deriving Intervention Levels for Tritium Contaminated Crops and Animal Feed for DOE Emergency Planning and Response Activities, may 2006

Tritium et convention OSPAR

Michel Chartier¹, Sophie Courtois²

¹ Services d'Etudes et d'Expertise en Radioprotection, IRSN

² Direction Générale de l'Energie et du Climat, Ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du Développement durable et de la Mer

Rapport IRSN/DRPH/SER n°23-2009

Abstract

The missions and the organisation of the OSPAR convention are given. The OSPAR strategy for the radioactive substances is stated. The results of work programme of the Radioactive Substances Committee are described and the consensus reached by Contracting Parties on the appropriate arrangements for this radionuclide is presented.

Résumé

Les missions et l'organisation de la convention OSPAR sont rappelées. La stratégie OSPAR concernant les substances radioactives est citée. Les Résultats des travaux du Comité des Substances Radioactives sur le tritium sont décrits et le consensus atteint entre les parties contractantes sur le traitement approprié de ce radionucléide est présenté.

Mots-clés

OSPAR, TRITIUM

1 | La convention OSPAR

La Convention OSPAR, pour la protection du milieu marin de l'Atlantique Nord-Est, a été signée le 22 septembre 1992 entre les gouvernements de 15 pays européens et la Commission Européenne, représentant la Communauté Européenne. Elle a fusionné et élargi le champ de deux Conventions régionales, la Convention d'Oslo (1974) pour la prévention de la pollution marine par les opérations d'immersion effectuées par les navires et les aéronefs, et la Convention de Paris (1978) pour la prévention de la pollution due aux rejets de substances dangereuses d'origine tellurique, charriées par les cours d'eau ou par les plates-formes en offshore. Elle est l'instrument légal actuel qui guide la coopération internationale pour la protection de l'environnement marin de l'Atlantique Nord-Est.

Les Parties Contractantes à la Convention OSPAR sont l'Allemagne, la Belgique, le Danemark, l'Espagne, la Finlande, la France, l'Irlande, l'Islande, le Luxembourg, la Norvège, les Pays-Bas, le Portugal, le Royaume-Uni, la Suède, la Suisse et la Commission européenne au titre du Traité instituant la Communauté européenne. Un certain nombre d'observateurs sont invités officiellement à participer aux débats au sein d'OSPAR : des organisations gouvernementales (OMI¹, PNUE², AIEA³...) et non gouvernementales (WNA⁴, Greenpeace, KIMO⁵, WWF⁶...).

Les limites géographiques de la zone couverte par la Convention (voir Figure 1) sont l'Atlantique Nord-Est, entre le Sud du Portugal et l'Océan Arctique (hors Méditerranée, couverte par la Convention de Barcelone, et la Mer Baltique, couverte par la Convention d'Helsinki). A noter que cette zone comprend les eaux intérieures et territoriales, la zone économique exclusive et la haute mer y compris les fonds marins correspondants et leur sous-sol. En pratique donc, les installations nucléaires terrestres qui rejettent des effluents radioactifs liquides dans la Garonne, la Loire, la Vienne, la Seine, la Meuse, la Moselle et le Rhin sont bien soumises aux dispositions de la Convention OSPAR. A noter que la France a choisi de ne pas communiquer d'informations sur les installations nucléaires de base secrètes.

1.1 | La mission de la convention OSPAR

La mission de la Convention OSPAR est de conserver les écosystèmes marins et de protéger la santé humaine en Atlantique Nord-Est, en prévenant et éliminant la pollution, en protégeant l'environnement marin contre les effets néfastes des activités humaines, et en contribuant à l'usage durable des mers.

¹ OMI : Organisation Maritime Internationale

² PNUE : Programme des Nations Unies pour l'Environnement

³ AIEA : Agence Internationale pour l'Energie Atomique

⁴ WNA : World Nuclear Association

⁵ KIMO : Kommunes Internasjonale Miljø Organisasjon

⁶ WWF : World Wide Fund for nature

L'approche de la Convention est clairement une approche globale du milieu marin, orientée « développement durable ». La Convention couvre en effet l'ensemble des pollutions pouvant affecter le milieu marin. Ainsi, elle comporte plusieurs annexes thématiques relatives à la prévention et à la suppression de la pollution d'origine tellurique (rejets industriels, matières nutritives, rejets radioactifs, etc.) et de la pollution provenant des opérations d'immersions ou d'incinérations de déchets (dont les déchets radioactifs) et des sources offshore (installations pétrolières et gazières au large).

Cette approche globale a été confirmée et renforcée par l'élargissement de son champ à la protection des écosystèmes marins et de leur diversité biologique. En effet, lors de la réunion ministérielle de la Commission OSPAR en juin 1998, une annexe relative à « la protection et à la conservation des écosystèmes et de la diversité biologique de la zone maritime » a été adoptée.

La Convention OSPAR intègre les orientations de la Conférence des Nations-Unies sur l'environnement et le développement, tenue à Rio en 1992. Ainsi, outre le principe de précaution, le principe du pollueur-payeur, le droit à l'information environnementale (droit d'accès du public aux informations concernant l'état de la zone maritime et la mise en œuvre de la Convention), la Convention inclut une référence expresse à l'utilisation des « meilleures techniques disponibles » (acronyme anglais BAT pour Best Available Techniques) et des « meilleures pratiques environnementales » (acronyme anglais BEP pour Best Environmental Practices) dans la mise en œuvre des programmes et mesures destinés à remplir les objectifs de la convention.

1|2| Les organes de la convention OSPAR

1|2|1| La Commission OSPAR

Les travaux au nom de la Convention sont menés par la Commission OSPAR, composée des représentants des gouvernements des 15 Parties Contractantes et de la Commission Européenne. La Commission d'OSPAR, organe exécutif de la convention a donc un rôle essentiel pour le suivi et l'évolution de la Convention et constitue le pivot de sa mise en œuvre.

Les missions de la Commission sont de surveiller la mise en œuvre de la Convention, d'examiner l'état de la zone maritime et l'efficacité des mesures adoptées, d'élaborer des programmes et mesures visant à prévenir et supprimer la pollution et à exercer un contrôle sur les activités pouvant atteindre la zone maritime.

Pour exercer ses missions, la Commission définit son programme de travail (sous forme de plans, programmes, mesures) et adopte deux types d'actes à la portée juridique variable : des recommandations, qui ne lient pas les parties contractantes et des décisions, qui lient les parties contractantes dans des conditions très précises.

La Commission se réunit tous les ans, généralement en juin. Chacune des parties contractantes dispose d'une voix lors des votes.

Régulièrement (en 1998 à Sintra, en 2003 à Brème et prochainement, en 2010 à Bergen), la Commission se réunit au niveau des ministres chargés des questions d'environnement. Ces réunions ministérielles sont naturellement des temps forts de la vie d'OSPAR. C'est notamment à l'occasion de ces réunions ministérielles qu'est publié le « bilan de santé » de l'environnement (acronyme anglais QSR pour Quality Status Report).

1|2|2| Les Organes Subsidiaires

Les travaux techniques sont menés par des comités stratégiques de 2ème niveau pour chaque type de pollution. Ces comités préparent et exécutent les travaux de la Commission OSPAR. Pour les substances radioactives, c'est le Comité des substances radioactive ou RSC (Radioactive Substances Committee) qui est chargé des travaux techniques,

y compris ce qui concerne les rejets de substances radioactives par l'industrie du pétrole et du gaz (plateformes pétrolières offshore), industrie qui, par ailleurs, est dans le champ d'un autre Comité pour les rejets d'autres substances dangereuses (Offshore Committee).

Des groupes techniques de 3ème niveau sont constitués en tant que de besoin sur certains sujets techniques précis (sur la surveillance continue, sur l'effet des substances dans le milieu marin, etc.).

Enfin un Secrétariat permanent, basé à Londres, est chargé de la gestion de la Convention et de ses travaux.

1|2|3| Le Comité des substances radioactives - RSC

Le RSC est composé de représentants des Parties Contractantes appartenant à des organismes étatiques ou parapublics spécialisés dans le domaine nucléaire ou l'environnement (radioprotection, protection de l'environnement, etc.).

Le RSC se réunit tous les ans, généralement en début d'année. Certaines Parties Contractantes sont systématiquement présentes comme l'Allemagne, la Belgique, l'Espagne, la France, l'Irlande, la Norvège, le Royaume-Uni, la Suède, la Suisse et la Commission européenne et d'autres plus irrégulièrement comme le Danemark, les Pays-Bas et le Portugal. Certains observateurs sont présents systématiquement comme World Nuclear Association et l'AIEA, et d'autres plus irrégulièrement comme Greenpeace International, KIMO, WWF.

Parmi ses travaux, il faut noter l'examen des rapports présentés tous les quatre ou cinq ans par chaque Partie Contractante au sujet de la mise en application des Meilleures Techniques Disponibles dans les installations nucléaires sur son territoire (conformément à la Décision PARCOM 91/4). Pour la France, un tel examen a été conduit en 2001 et 2005 et s'est conclu par un vote positif unanime des Parties Contractantes en 2005 (l'Irlande s'étant abstenu de voter pour des raisons juridiques liées à un contentieux avec le Royaume-Uni) et quasi-unanime en 2001 (l'Irlande ayant exprimé un désaccord sur l'application de la BAT à l'usine de La Hague, mais sans que le tritium soit particulièrement visé comme raison de ce désaccord). On peut noter que la France présentera son prochain rapport sur l'application de la BAT dans le secteur nucléaire en France à la réunion du RSC de 2010.

1|3| La déclaration de Sintra : la « stratégie OSPAR »

Lors de la réunion ministérielle à Sintra (Portugal) en 1998, les ministres ont pris un engagement politique connu sous le nom de Déclaration de Sintra (voir encadré ci-dessous)

Déclaration de Sintra : Stratégie pour les substances radioactives

Nous [les Ministres et le Membre de la Commission Européenne] convenons d'empêcher que la zone maritime ne soit polluée par des radiations ionisantes, ceci par des réductions progressives et substantielles des rejets, émissions et pertes de substances radioactives, le but étant en dernier ressort de parvenir à des teneurs, dans l'environnement, proches des teneurs ambiantes dans le cas des substances radioactives présentes à l'état naturel, et proches de zéro dans le cas des substances radioactives artificielles. Pour atteindre cet objectif, les éléments suivants seront entre autres pris en compte :

- les utilisations légitimes de la mer
- la faisabilité technique
- les impacts radiologiques sur l'homme et le milieu vivant.

Nous ferons en sorte que les rejets, émissions et pertes de substances radioactives soient, d'ici l'an 2020, ramenés à des niveaux tels que, par rapport aux niveaux historiques, les concentrations additionnelles résultant desdits rejets, émissions et pertes soient proches de zéro. Nous porterons toute l'attention voulue à la sécurité des membres du personnel des installations nucléaires.

Il est à noter que le Conseil d'Etat a estimé, par une décision du 23 avril 2009, que la Déclaration de Sintra était dépourvue de portée normative. Il faut toutefois souligner que si la déclaration de Sintra n'a, effectivement, pas de valeur juridique contraignante, elle n'en constitue pas moins un engagement politique fort.

2 | Le tritium : un des « points de Brême »

Au cours de la préparation de la réunion ministérielle de Brême de 2003, la France a posé un certain nombre de questions pour l'application de la Stratégie OSPAR. Les rejets de tritium par les installations nucléaires faisaient partie de ces interrogations. La France avait en effet remarqué que les rejets de tritium dans la zone OSPAR, contrairement à ceux de la plupart des autres radionucléides, avaient augmenté depuis 1992 jusqu'au début des années 2000 puis s'étaient stabilisés sans marquer une baisse significative (voir Figure 2 : rejets de tritium par les installations nucléaires dans l'Atlantique Nord-Est).

Les Parties Contractantes ont pris acte de ces questions à la réunion de Brême et sont convenues de confier au RSC le soin de trouver une réponse recueillant un consensus des Parties Contractantes.

2.1 | Les travaux du RSC sur le tritium

A la suite de la réunion ministérielle de Brême, les travaux du RSC sur le tritium ont porté sur quatre aspects principaux : la faisabilité technique de réduction des rejets, les concentrations de tritium dans l'environnement marin de l'Atlantique Nord-Est, les doses reçues par la population du fait de ces concentrations, les doses reçues par les organismes vivants de l'Atlantique Nord-Est autre que l'homme du fait de ces concentrations.

Les travaux du RSC sur la faisabilité technique de réduction des rejets ont montré qu'il existait, à l'échelle du laboratoire, des techniques d'extraction du tritium des effluents liquides. Ces travaux ont montré également que d'autres techniques étaient en développement. Toutefois, il est apparu que pour des concentrations de tritium dans les effluents représentatifs du fonctionnement des usines de retraitement et des centrales nucléaires à eau légère, ces techniques étaient difficiles d'application et présentaient de sérieux inconvénients, comme une consommation énergétique très importante. Les Parties Contractantes ont constaté in fine que de telles techniques n'étaient mises en œuvre pour aucune centrale ou usine de retraitement située sur leur territoire et que ce constat n'avait nullement été identifié comme contradictoire avec la mise en œuvre effective des meilleures techniques disponibles (BAT) dans les revues quadriennales organisées par le RSC sur ce sujet.

Les travaux du RSC sur les concentrations et les doses ont montré que, d'une part les concentrations restaient limitées, ceci dans tous les compartiments de l'Atlantique Nord-Est, d'autre part les doses reçues par l'homme et les organismes vivants du fait de la présence de tritium dans l'environnement marin étaient très faibles. Il faut noter que les doses calculées tenaient compte des concentrations totales de tritium, c'est-à-dire sans différencier son origine (naturelle, essais d'arme ou rejets). A ce titre, les calculs de dose étaient conservatifs.

2.2 | Le consensus sur le tritium

Un groupe de travail issu du RSC a été consacré à l'élaboration d'un consensus entre les Parties Contractantes sur les « points de Brême » et en particulier sur le tritium. Un tel consensus a été atteint.

Ce consensus repose sur le constat qu'aujourd'hui, il n'y a pas de « faisabilité technique » pour une réduction du tritium à l'échelle industrielle dans les effluents liquides provenant des centrales nucléaires et des usines de retraitement ; ce constat ne permet donc pas de faire entrer aujourd'hui le tritium dans la stratégie OSPAR de réduction des rejets comme on le fait pour les radionucléides pour lesquels de telles techniques existent. Toutefois, ce constat s'accompagne d'un certain nombre de mesures rappelées dans le consensus : la nécessité d'examiner dans l'avenir les développements éventuels de nouvelles techniques de réduction, la nécessité de poursuivre la collecte des données de rejet de tritium et de donner des explications aux variations des rejets (accroître la transparence sur ces rejets au niveau d'OSPAR), enfin la nécessité d'évaluer les tendances temporelles des concentrations de tritium dans l'environnement et des doses en résultant.

Ce consensus marque donc une étape importante pour l'application de la stratégie OSPAR mais ne saurait être considéré comme une solution définitive. La problématique tritium n'est pas considérée comme un point définitivement refermé par le RSC mais comme un sujet qui doit être périodiquement réexaminé, notamment si des données nouvelles étaient susceptibles de remettre en question les prémisses du consensus. Les Parties Contractantes ont notamment évoqués au cours des discussions le développement de techniques nouvelles de réduction des rejets de tritium ou d'industrialisation de procédés de laboratoire, de nouvelles données de concentration de tritium dans l'environnement significativement plus élevées que celles aujourd'hui rapportées, de nouvelles données sur les coefficients de dose du tritium.

3 | Conclusion

Un consensus a été atteint au Comité des substances radioactives (RSC), partagé par l'ensemble des Parties Contractantes, au sujet de l'application de la stratégie OSPAR aux rejets de tritium. La non-faisabilité technique pour une réduction à l'échelle industrielle dans les effluents liquides provenant des centrales nucléaires et des usines de retraitement a été actée. Les doses à l'homme et aux organismes vivant ont été estimées et trouvées très faibles. Ces points correspondent bien aux réserves mentionnées dans la Stratégie OSPAR pour les substances radioactives. Ce consensus a été noté par la Commission OSPAR à Bruxelles en 2009. Toutefois, il convient de noter que le RSC estime qu'un réexamen périodique des termes de ce consensus et de ses bases techniques est nécessaire. Certaines Parties Contractantes ont à cet égard indiqué qu'il n'était pas souhaitable d'attendre l'année 2020 pour procéder à un premier réexamen.

Il est également important de noter que ce consensus sur l'application de la stratégie OSPAR aux rejets de tritium ne pourra être considéré comme réellement atteint entre les Parties Contractantes que si les Ministres qui les représentent en prennent acte ou, à tout le moins, si aucun Ministre ne s'y oppose ; en effet, il convient de rappeler que l'application de la stratégie OSPAR est un engagement politique des ministres et qu'il leur revient de statuer in fine sur son application. L'opportunité de franchir cette étape sera donnée à la réunion Ministérielle de 2010 à Bergen en Norvège.

Aujourd'hui, rien ne semble indiquer que ce consensus posera problème, mais les discussions préparatoires de la réunion n'en sont qu'au tout début.

Figure 1 : Surface couverte par la Convention OSPAR

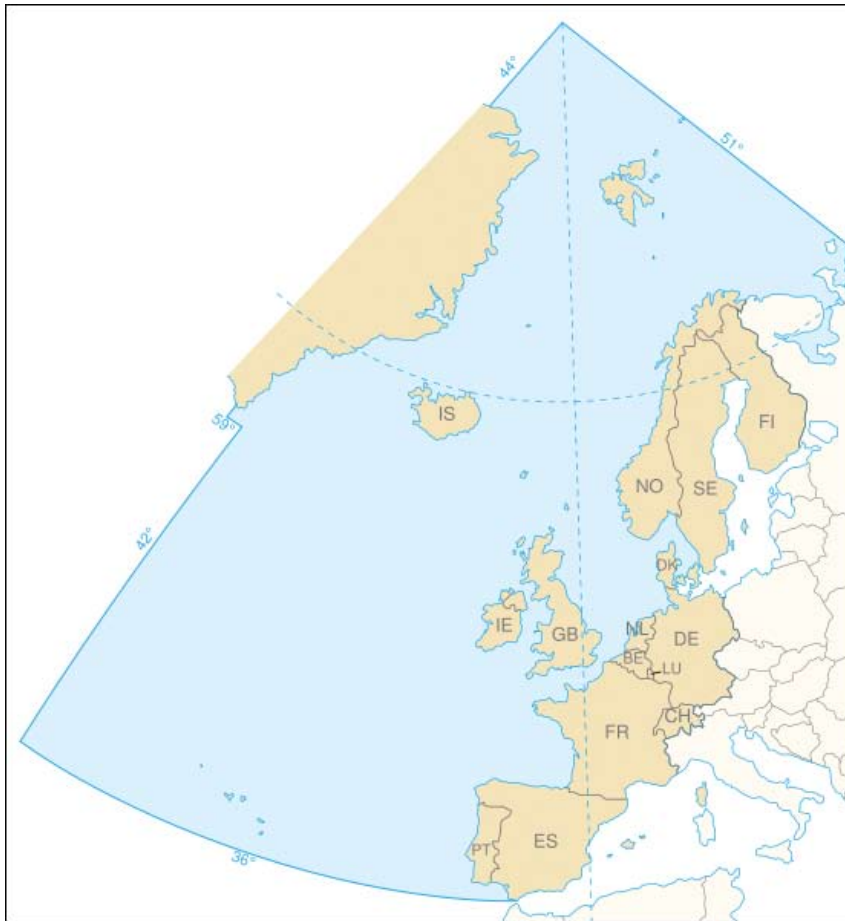
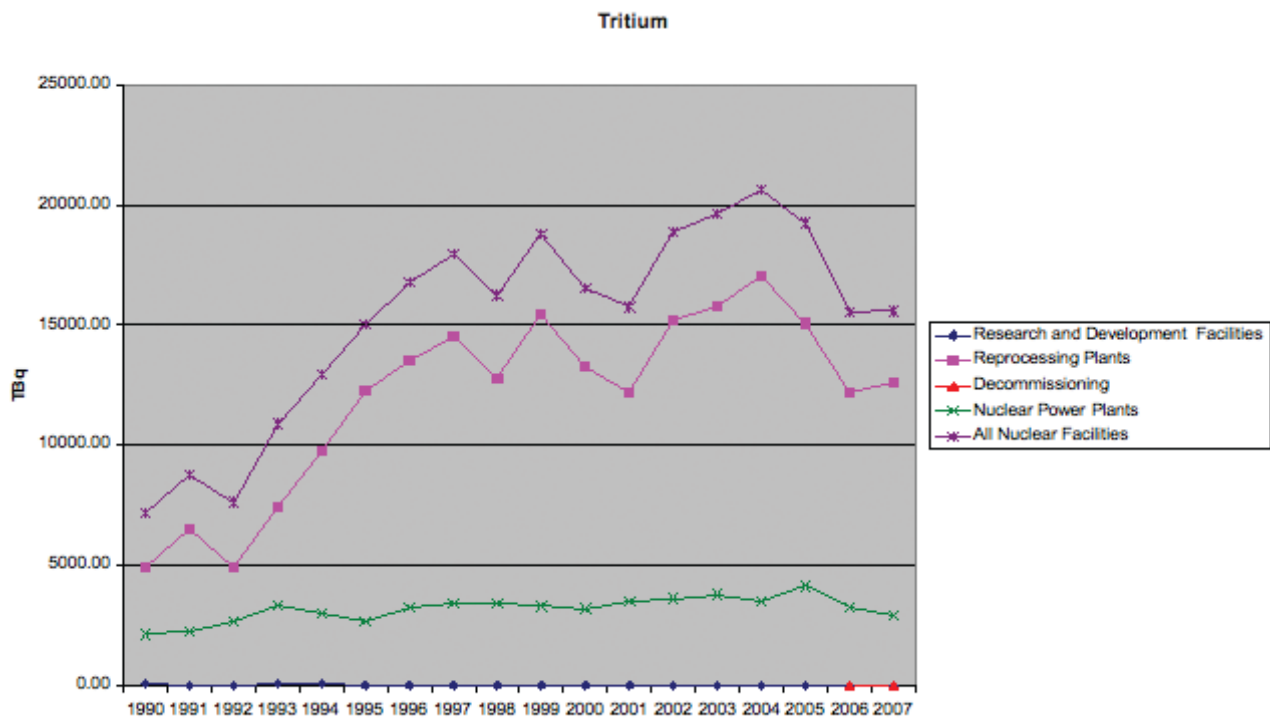


Figure 2 : Rejets de tritium par les installations nucléaires dans l'Atlantique Nord-Est depuis 1992 (en TBq)





Point de vue de l'IRSN sur les questions clés et sur les pistes de recherche et de développement

Le tritium dans l'environnement

Direction de l'Environnement et de l'intervention - IRSN
Collectif
Rapport IRSN/DEI 2010-01

1 | Introduction

Le présent rapport développe le point de vue de l'IRSN sur les questions clés relatives au comportement du tritium dans l'environnement et aux risques associés, en s'appuyant sur la synthèse des connaissances développée dans le rapport IRSN/DEI-2009-05 (voir page 44) ; cette synthèse a elle-même été établie à partir de l'examen des résultats d'études et de recherches menées depuis plusieurs décennies sur ce radionucléide, ainsi que des données issues des observations environnementales sur le territoire français. Cette contribution s'inscrit dans le cadre d'un débat actif en France autour de ces questions : séminaire organisé par l'Association nationale des commissions locales d'information (ANCCLI) en novembre 2008, mise en place par l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) d'un groupe de réflexion sur l'impact du tritium (janvier 2008 – février 2010), journées de la Société française de radioprotection (SFRP) consacrées au tritium (septembre 2009).

Ce débat est lui-même suscité par deux éléments de contexte distincts :

- au plan international, des questionnements existent sur les risques sur la santé de l'homme exposé au tritium présent dans l'environnement, à l'occasion de débats scientifiques ou sociétaux (CERRIE, 2004 ; AGIR, 2007 ; Greenpeace, 2007 ; séminaire scientifique organisé par la Commission européenne à Luxembourg, 2007 ; atelier organisé par la Commission canadienne de sûreté nucléaire, 2008) ;
- en France, le tritium est un des radionucléides prépondérants en termes d'activité rejetée par les installations nucléaires, dans les effluents liquides et gazeux. Les changements de mode de gestion du combustible des réacteurs actuels, la mise en exploitation de nouveaux réacteurs (notamment l'EPR) ainsi que celle, à moyen terme, de l'installation de fusion ITER devraient conduire, dans les années qui viennent, à une augmentation des rejets de tritium dans l'environnement.

A partir de l'examen des résultats d'études et de recherches menées sur le tritium, l'IRSN a identifié trois questions clés relatives au tritium dans l'environnement et à ses conséquences sur les écosystèmes :

- a-t-on une connaissance suffisante sur le devenir du tritium rejeté par les activités nucléaires ?
- existe-t-il un risque de bioaccumulation du tritium par les organismes vivants au sein des écosystèmes ?
- existe-t-il une connaissance appropriée des risques dus au tritium incorporé par des organismes vivants ?

Le présent rapport donne des éléments d'éclairage sur ces questions et propose des pistes de recherches et de développement de techniques ou de méthodes spécifiques, qui permettraient d'apporter des connaissances utiles du point de vue de la radioprotection. Le rapport IRSN/DEI-2009-05 fournit une liste très complète de références bibliographiques, non reprises ici.

2 | A-t-on une bonne connaissance du devenir du tritium rejeté par les activités nucléaires ?

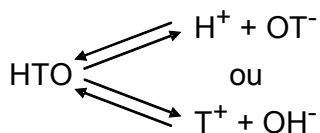
2.1 | Le tritium : un isotope radioactif de l'hydrogène, constituant de l'eau et de la matière organique

Le tritium (symbolisé par ^3H ou T) est un isotope radioactif de l'hydrogène et, de ce fait, a un comportement analogue à celui de cet élément :

- l'élément hydrogène est un constituant des molécules d'eau (H_2O) et, à ce titre, le tritium (T) peut se substituer à un atome d'hydrogène stable (H) en formant une molécule d'eau tritiée (HTO) ; il en va de même pour le gaz dihydrogène (H_2), d'abondance plus faible que l'eau dans l'atmosphère, pouvant devenir tritié (HT) ;
- l'élément hydrogène est un constituant majeur (avec le carbone, l'azote et l'oxygène) des molécules organiques constituant la matière vivante et ses produits de dégradation.

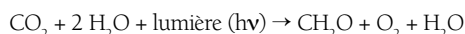
D'une manière générale, la composition chimique des différents constituants minéraux ou organiques intégrant l'élément hydrogène est bien connue, ainsi que les propriétés physico-chimiques de ces substances, à la fois dans le cycle de l'eau et dans les grandes fonctions métaboliques des organismes vivants (photosynthèses, métabolisme énergétique, anabolisme/catabolisme...). Le devenir du tritium rejeté dans l'environnement est régi par les propriétés générales de l'élément hydrogène au sein de ces différents processus. Il est toutefois à noter qu'en raison de la différence de masse atomique entre le tritium (3) et l'hydrogène stable (1), des phénomènes de fractionnement isotopique peuvent survenir lors des changements de phase de l'eau (évaporation, condensation, solidification, fusion) qui entraînent un faible enrichissement en tritium par rapport à l'hydrogène stable dans la phase la plus condensée (eau liquide).

Les molécules d'eau ont une propriété de dissociation partielle (ou ionisation) en ions H^+ (hydratés avec une molécule d'eau pour devenir H_3O^+) et OH^- ; dans le cas de l'eau tritiée, les équilibres suivants s'établissent :



L'état d'équilibre dépend des réactions acido-basiques avec les autres espèces chimiques en solution, déterminant le pH de l'eau, pouvant conduire l'élément hydrogène (H^+ ou T^+) ou l'ion hydroxyle (OH^- ou OT^-) à se lier à des molécules basiques ou acides, dont certaines peuvent être des molécules organiques. Il résulte de cette propriété fondamentale une capacité d'échange rapide du tritium de l'eau tritiée avec l'ensemble des molécules d'eau et des substances ayant des fonctions acido-basiques, présentes dans le milieu récepteur. Le tritium de l'eau tritiée absorbée par les animaux et les plantes peut ainsi se retrouver rapidement dans les milieux extracellulaire et intracellulaire, associé au cytosol (solution cellulaire) ou lié à des molécules organiques.

La plupart des végétaux terrestres et aquatiques, dits autotrophes, ont la capacité de synthétiser des molécules organiques à partir de carbone, d'hydrogène et d'azote minéraux, grâce à la photosynthèse qui entraîne l'intégration d'atomes d'hydrogène dans des glucides selon la réaction schématisée type suivante :



Lorsque la photosynthèse se fait en présence d'eau tritiée, du tritium peut être intégré aux glucides synthétisés et se retrouver ainsi lié à la matière organique. Le métabolisme du végétal entraîne la synthèse d'autres composants organiques (glucides, lipides, protéines, acides aminés...) qui peuvent, à leur tour, contenir du tritium.

Pour l'ensemble des animaux, qui sont des organismes hétérotrophes, la biosynthèse des molécules organiques nécessaires à la constitution des cellules et des tissus ainsi qu'au métabolisme est uniquement réalisée à partir de molécules organiques venant de l'alimentation. Si l'alimentation comporte des molécules organiques tritiées, le tritium ainsi incorporé peut se retrouver plus ou moins durablement fixé à des constituants biologiques de l'organisme vivant¹. Il convient de souligner qu'en raison de la différence de masse atomique entre l'hydrogène stable (1) et le tritium (3), ce dernier a tendance à être défavorisé lors des réactions enzymatiques, ce qui conduit ainsi à un certain fractionnement isotopique en faveur de l'hydrogène stable lié à la matière organique.

En conclusion, l'IRSN estime que les processus physico-chimiques et biologiques déterminant le devenir du tritium, en tant qu'isotope radioactif de l'hydrogène, sont bien connus dans leur ensemble, et n'a identifié aucun phénomène susceptible de conduire à concentrer davantage le tritium dans la matière organique que l'hydrogène stable dont il suit le même comportement. La bonne compréhension du devenir du tritium dans l'environnement nécessite de déterminer sa forme chimique (appelée aussi « spéciation »).

Les principales formes de tritium habituellement considérées dans les études environnementales :

- **eau tritiée** : eau contenant du tritium sous forme moléculaire (HTO) ou ionisée (T^+ ou OT^-) ; on parle également de « tritium libre » pour l'eau tritiée tissulaire (intra ou extracellulaire) d'un échantillon biologique ;
- **tritium organiquement lié (TOL) ou « organically bound tritium » (OBT)** : tritium lié à des molécules organiques, soit facilement échangeable (TOL-E) comme par exemple le tritium associé à un radical acide, soit non-échangeable (TOL-NE) car fixé par une liaison covalente.

2|2| La mesure du tritium dans les rejets et dans l'environnement

2|2|1| Les techniques de prélèvement et de mesure

La quantification du tritium dans les milieux physiques de l'environnement (atmosphère, hydrosphère) et les rejets d'effluents des installations se fait à l'aide de mesures sur des échantillons d'eau obtenus :

- soit par des prélèvements d'eau (eaux de surface, eaux de mer, eaux souterraines, eaux de pluie) ou par condensation de l'eau évaporée à partir d'un prélèvement d'effluent liquide (technique de la lentille de glace) ;
- soit par la collecte de vapeur d'eau de l'air (ou des effluents gazeux) à l'aide de barboteurs (aspiration d'air à travers un volume d'eau pauvre en tritium), de colonnes desséchantes solides ou de dispositifs de condensation (système PREVAIR mis au point par l'IRSN).

Il est à noter que ces techniques de prélèvement ne permettent généralement de quantifier que le tritium sous forme d'eau tritiée (HTO). Par conséquent :

- dans les effluents gazeux et dans l'air : le tritium présent sous forme de gaz dihydrogène (H_2) ou de méthane (CH_4) n'est pas recueilli lors des prélèvements, sauf si le dispositif comprend une étape d'oxydation catalytique de l'hydrogène de l'air ; ces formes chimiques du tritium gazeux ne sont donc pas quantifiées en routine, mais il est admis qu'elles sont minoritaires dans les rejets, par rapport à la forme HTO (moins de 5 % des rejets gazeux de tritium pour les centrales nucléaires) ;
- dans les effluents liquides et dans les milieux aquatiques continentaux ou marins : le tritium lié à la matière organique en suspension ou en solution dans l'eau n'est pas spécifiquement quantifié. Or, comme on le verra au paragraphe 3.2, il est important de connaître la part du tritium éventuellement lié à des molécules organiques dans l'eau, notamment pour interpréter d'éventuelles valeurs de facteurs de concentration montrant un déséquilibre entre certains organismes aquatiques et le milieu ambiant.

Pour les échantillons biologiques (végétaux, animaux) ou solides (sédiments, sols), un traitement préalable est généralement nécessaire d'une part pour mettre le tritium sous une forme mesurable (eau tritiée), d'autre part pour quantifier séparément le tritium libre (eau tritiée contenue dans les échantillons) et le tritium lié à la matière organique (matière vivante, humus ou matière organique sédimentée). L'extraction du tritium libre (HTO) se fait habituellement par séchage, préférentiellement par lyophilisation, suivi de la collecte par condensation de l'eau évaporée. La fraction sèche résultant de ce traitement contient le tritium lié à la matière organique (TOL ou OBT) ; selon la technique analytique utilisée (notamment pour l'analyse par scintillation liquide), le tritium organiquement lié peut être transformé en eau tritiée (HTO) par combustion de la matière organique, cette eau tritiée étant ensuite récupérée pour analyse. Pour des études plus fines sur l'état du tritium dans la matière organique, une étape préalable à la

combustion (lessivage de l'échantillon dans de l'eau non tritiée) permet de séparer le tritium organiquement lié échangeable (TOL-E) qui migre dans l'eau de lessivage et le tritium organiquement lié non échangeable (TOL-NE) qui reste dans la fraction solide de l'échantillon.

Certains laboratoires réalisent également des mesures du tritium total contenu dans l'échantillon (HTO+OBT) en effectuant une oxydation chimique complète de celui-ci (à l'aide d'acide chromique) puis en récoltant l'eau de distillation de l'échantillon oxydé.

¹ Le métabolisme énergétique (cycle de Krebs) des cellules conduit également à intégrer dans des molécules organiques de l'hydrogène venant de molécules d'eau

La technique de mesure du tritium dans l'eau la plus couramment utilisée est la scintillation liquide qui présente l'avantage d'être simple et rapide à mettre en œuvre, et peu coûteuse. La limite de détection est voisine de 6 Bq/L pour les mesures faites avec un liquide scintillant standard et peut être environ 5 fois plus petite pour les mesures faites avec un liquide scintillant « bas bruit de fond ». **Cette limite de détection est largement suffisante pour des mesures réalisées dans le cadre d'un contrôle réglementaire du tritium autour des installations nucléaires, l'objectif principal étant de détecter rapidement une éventuelle élévation anormale de l'activité du tritium dans l'environnement.**

Toutefois, cette limite de détection est trop élevée dès lors que l'on veut s'intéresser au devenir et au comportement du tritium dans les différentes composantes physiques et biologiques de l'environnement ; en effet, l'activité du tritium libre et celle du tritium organiquement lié (exprimées en Bq/L d'eau de distillation ou de combustion) sont actuellement souvent voisines de 1 Bq/L, voire inférieures, en raison d'une décroissance régulière de la concentration du tritium observée dans l'environnement au cours des quinze dernières années. Dans ces conditions, pour poursuivre l'observation des tendances d'évolution du tritium dans les différents milieux ou pour déterminer avec suffisamment de précision les facteurs de concentration du tritium dans les organismes vivants ou dans les sédiments, il est nécessaire de recourir à des techniques d'analyse plus fines. C'est ce que permet en particulier la technique de mesure de l'hélium-3 (^3He) par spectrométrie de masse. Le principe de cette technique consiste, dans un premier temps, à laisser décroître le tritium de l'échantillon à analyser dans un récipient étanche, afin d'accumuler une quantité suffisante d'hélium-3 (descendant stable du tritium), puis de mesurer cette quantité d'hélium à l'aide d'un spectromètre de masse. La limite de détection est d'autant plus basse que l'échantillon aura été laissé en décroissance pendant une longue durée ; par exemple, la décroissance du tritium pendant 6 mois dans un échantillon de 0,5 L d'eau permet de mesurer le tritium avec une limite de détection de 0,003 Bq/L. **Cette technique de mesure doit être réservée de préférence aux études radioécologiques sur le comportement du tritium car, en raison des délais importants d'obtention des résultats, elle ne convient pas pour une surveillance de routine de l'environnement d'une installation rejetant du tritium.**

La qualité des techniques de mesure ne suffit pas à garantir la pertinence des résultats obtenus. En effet, une partie du tritium des échantillons (tritium libre, essentiellement) pouvant avoir une forte propension à s'échanger avec la vapeur d'eau de l'air ambiant, le manque de précaution au cours des étapes de collecte, de conditionnement des échantillons et de préparation préalable de l'échantillon avant mesure, peut entraîner des échanges incontrôlés de tritium avec le reste de l'environnement. Il peut en résulter soit une perte partielle de tritium si la vapeur d'eau ambiante est moins tritiée, soit au contraire un accroissement de la concentration du tritium lorsque l'activité initiale du tritium dans l'échantillon est très faible (exemple : eau profonde de l'Atlantique, où l'activité du tritium est de l'ordre de la dizaine de mBq/L). Dans un tel cas, le résultat de mesure obtenu pour l'échantillon peut être non représentatif de l'état réel du milieu échantillonné.

2|2|2| Expression des résultats de mesure du tritium

On constate une disparité dans l'expression des résultats de mesure du tritium présentés dans les nombreuses publications scientifiques et techniques traitant du tritium dans l'environnement. Cette situation peut nuire à l'interprétation des résultats et à la comparaison des études.

Compte tenu des propriétés du tritium décrites au paragraphe 2.1, il est recommandé de préciser la forme chimique du tritium mesurée lorsqu'on s'intéresse aux phénomènes de transfert et à l'évaluation de l'impact radiologique. Pour les échantillons biologiques, les sols et les

sédiments, il convient au moins de distinguer le tritium libre et le tritium organiquement lié ; il est également souhaitable de connaître la fraction non échangeable du tritium organiquement lié, dont la rémanence peut être significativement plus élevée (cf. § 3). En pratique, selon les laboratoires ou les auteurs de publications, l'« OBT » peut signifier soit la totalité du tritium organiquement lié, soit uniquement sa fraction non échangeable, ce qui rend parfois difficiles les comparaisons des résultats des différents auteurs.

Pour les calculs de dose, il est nécessaire d'utiliser des résultats de mesure exprimés soit en Bq/kg_(frais) (ou Bq/L pour les liquides) pour les denrées consommables par l'homme, soit en Bq/m³ pour l'air respiré. En revanche, pour suivre et étudier l'impact environnemental du tritium, il est préférable d'exprimer tous les résultats en Bq/L (Bq/L d'eau de distillation pour la fraction HTO et Bq/L d'eau de combustion pour la fraction OBT) quelle que soit la forme chimique initiale du tritium, afin de faire abstraction des différences d'hydratation et de teneur en matière organique des différentes matrices étudiées. L'expression des résultats sous cette forme est également cohérente avec les protocoles analytiques couramment utilisés, qui conduisent à transformer le tritium de l'échantillon en eau tritiée.

Quelle que soit la forme chimique initiale du tritium, l'activité volumique de l'eau tritiée obtenue par combustion de l'échantillon (pyrolyse et oxydation complète des gaz de combustion) est représentative du rapport entre le nombre d'atomes de tritium et le nombre d'atomes d'hydrogène de l'échantillon².

L'étude de l'activité de l'eau tritiée des échantillons de l'environnement prélevés à plus ou moins grande distance des sources d'émission permet de suivre et de comparer les processus de dilution du tritium au sein de l'hydrogène stable présent dans les différents constituants de l'environnement, principalement l'eau et la matière organique.

Il est également possible d'évaluer d'éventuels déséquilibres de concentration du tritium au sein d'un organisme vivant (en comparant l'activité du tritium organiquement lié à celle du tritium libre) ou entre un organisme vivant et son milieu ambiant (vapeur d'eau de l'air, eau du sol ou milieu aquatique). **On emploie alors la notion de « facteur de concentration », celui-ci étant défini comme le rapport des activités de l'eau tritiée mesurées dans chacun des deux compartiments étudiés ; il s'agit d'un paramètre macroscopique et empirique, dont l'interprétation nécessite de tenir compte des processus physiques et biologiques contrôlant les transferts de tritium** (voir aussi le § 3).

2|2|3| Conclusions concernant les mesures de tritium

L'IRSN souligne que le choix d'une technique analytique pour le tritium doit être adapté à l'objectif principal poursuivi :

- la technique de mesure par scintillation liquide est suffisante pour la surveillance de routine visant à détecter rapidement toute élévation anormale de l'activité du tritium dans l'environnement et, généralement, on peut se satisfaire d'une mesure du tritium total ;
- par contre, pour suivre et comprendre le devenir du tritium dans l'environnement, il est nécessaire de recourir à des techniques plus fines (mesure par spectrométrie de masse de l'hélium-3), en distinguant systématiquement le tritium libre (HTO) et le tritium organiquement lié (OBT) dans les échantillons biologiques, dans les sols ou dans les sédiments.

² Par exemple, si l'hydrogène stable (H) et le tritium (T) sont constitutifs de molécules organiques ayant une formule de type $\text{CH}_n\text{-xTx}$, l'oxydation complète de ces molécules entraîne la production d'eau tritiée contenant x HTO et $(n-x)$ H₂O, qu'on peut également exprimer sous la forme globale Hn-xTxO ; dans tous les cas, le rapport (nombre d'atomes de tritium)/(nombre d'atomes de l'élément hydrogène) est identique et vaut x/n .

Dans le cadre de l'évolution de sa stratégie de surveillance de la radioactivité de l'environnement, l'IRSN prévoit de développer davantage ce deuxième objectif, afin de renforcer la complémentarité de sa surveillance du tritium par rapport à celle assurée par les exploitants nucléaires dans le cadre des prescriptions réglementaires qui s'imposent à eux.

L'IRSN rappelle que la maîtrise de la qualité métrologique des mesures de tritium en laboratoire n'est pas une condition suffisante à l'obtention de résultats pertinents et qu'une **vigilance particulière doit être assurée dès l'étape de prélèvement des échantillons** dans l'environnement, afin de prévenir les échanges incontrôlés de tritium avec le milieu ambiant avant analyse et d'éviter de se méprendre dans l'interprétation des résultats.

Enfin, il est important d'harmoniser l'expression des résultats de mesure du tritium en fonction du cadre d'emploi :

- systématiquement en Bq/L, que ce soit pour HTO ou OBT, quel que soit l'objectif de la mesure et en particulier lorsqu'il

s'agit d'étudier le devenir du tritium dans l'environnement ou de détecter une élévation éventuelle de l'activité du tritium dans l'environnement ;

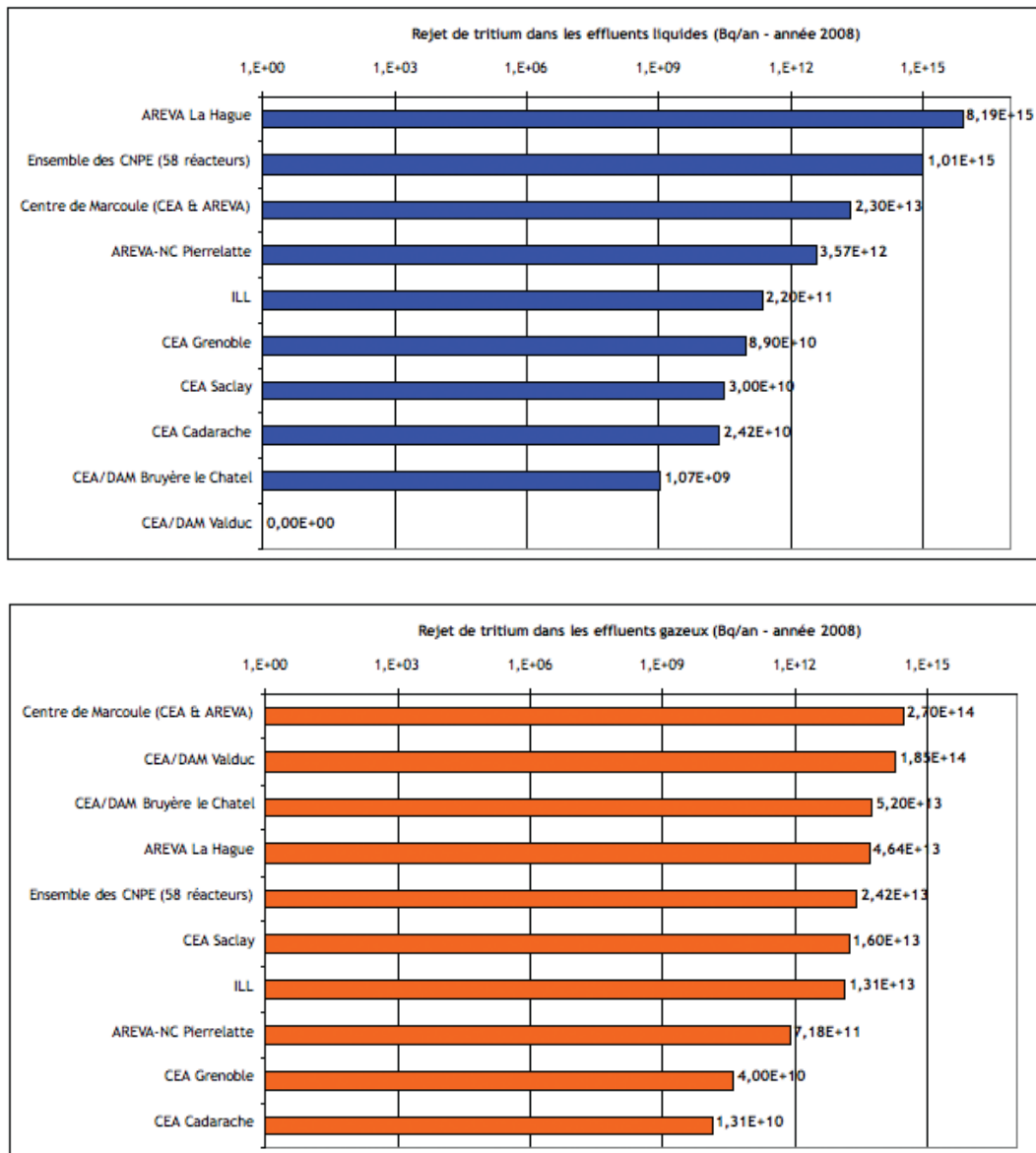
- en Bq/kg_{fraîs}, Bq/L ou Bq/m³ lorsque les résultats sont utilisés pour faire des évaluations de doses dues à l'ingestion de produits tritiés (en distinguant la part liée à la matière organique, s'agissant des aliments) ou à l'inhalation.

2/3 | L'observation du devenir du tritium dans l'environnement

Les principales origines du tritium présent dans l'environnement sont :

- la production naturelle, principalement dans l'atmosphère (interactions avec le rayonnement cosmique), représentant chaque année la formation de l'ordre de $7,2 \cdot 10^{16}$ Bq de tritium et conduisant à un inventaire permanent d'environ $1,275 \cdot 10^{18}$ Bq à l'échelle planétaire ;

Figure 1 – Rejets annuels de tritium dans les effluents liquides (en haut) et gazeux (en bas) déclarés par les exploitants des principaux sites nucléaires en France (2008).



- la libération de tritium lors des essais aériens d'armes nucléaires effectués entre 1945 et 1980, représentant une quantité de tritium estimée à 186.10^{18} Bq ;
- les rejets des installations du cycle du combustible nucléaire civiles et militaires en fonctionnement normal et lors des phases de démantèlement, représentant globalement une activité annuelle de $9,83 \cdot 10^{15}$ Bq (année 2008), à 94% dans les effluents liquide (figure 1) ;
- les rejets liés à l'utilisation du tritium dans l'industrie biomédicale, et plus généralement aux activités de recherches (molécules marquées) ;
- l'utilisation ancienne du tritium dans l'horlogerie et la fabrication de peintures luminescentes.

La quantité de tritium présente dans la biosphère a fortement augmenté lors des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère, entre 1945 et 1980. La décroissance radioactive (période de 12,32 ans) a fait disparaître près de 90 % du tritium produit au cours de cette période. Aujourd'hui et pour les années à venir, les sources de tritium les plus importantes sont celles issues des rejets des installations du cycle du combustible nucléaire (réacteurs, usines de traitement de combustibles usés) et, dans le futur, des applications impliquant la fusion nucléaire.

L'IRSN dispose, sur plusieurs décennies, de nombreux résultats de mesure du tritium dans des échantillons terrestres, aquatiques et marins prélevés soit dans le cadre de sa mission de surveillance de l'environnement, soit dans le cadre d'études radioécologiques réalisées sur le territoire métropolitain français, autour des diverses installations nucléaires (centrales nucléaires en fonctionnement ou en démantèlement, usines de traitement de combustibles usés, centres de stockage...) ou sur des zones hors de toute influence industrielle afin de déterminer les bruits de fond pour les différents radionucléides. L'exploitation de ces résultats permet d'en tirer les principales informations suivantes.

2|3|1| Le tritium dans l'air

Globalement, l'activité volumique du tritium dans l'air a fortement diminué au fil des années, depuis l'arrêt des essais atmosphériques d'armes nucléaires. En 2008, les activités du tritium mesurées dans l'eau de pluie se situent entre 1 et 4 Bq/L, ce qui correspond à environ 0,01 à 0,04 Bq/m³ d'air, en supposant un équilibre entre l'eau de pluie et la vapeur d'eau de l'air ambiant. Des valeurs significativement plus élevées sont observées auprès des sites nucléaires de Valduc (d'un facteur 100 à 500), Marcoule et La Hague. En revanche, un tel marquage de l'air n'est pas visible autour des centrales nucléaires qui rejettent beaucoup moins de tritium dans l'air.

Par ailleurs, il semble que les activités du tritium atmosphérique sous forme de HT et de CH₃T demeurent à des niveaux stables, respectivement de 0,019 et 0,012 Bq/m³, supérieurs au bruit de fond antérieur à 1945. Les activités actuelles de ces formes du tritium suggèrent que leur transformation en HTO est très lente ou qu'un apport significatif de tritium sous forme HT et CH₃T se poursuit encore actuellement.

2|3|2| Le tritium dans les écosystèmes terrestres

L'examen des résultats acquis par l'IRSN au cours des 20 dernières années, principalement pour des échantillons végétaux, montre une gamme de valeurs d'activité volumique allant de moins de 1 Bq/L à près de 50 Bq/L dans les zones hors influence des rejets d'installations nucléaires, et pouvant parfois dépasser une centaine de Bq/L dans des échantillons prélevés sous l'influence des rejets atmosphériques d'installations. D'autres données de la littérature technique indiquent des valeurs de plusieurs milliers de Bq/L pour certains végétaux sous

l'influence de rejets. Les gammes de valeurs sont analogues pour le tritium libre et pour le tritium lié à la matière organique.

Ces résultats montrent globalement une tendance à la diminution depuis une quinzaine d'années, souvent selon une période plus courte (environ 6 ans pour le lait) que la période radioactive du tritium (pour plus de détail, voir le paragraphe 3.2.3). Aujourd'hui, la quantification, en milieu continental, des activités de tritium imputables aux installations nucléaires devient délicate car les valeurs à mesurer sont proches du bruit de fond local.

2|3|3| Le tritium dans les écosystèmes aquatiques continentaux

Les résultats de mesures de l'IRSN des 20 dernières années montrent une gamme de valeurs d'activité et une évolution similaires à celles observées en milieu terrestre, pour les échantillons végétaux et animaux. Dans les eaux de surface, les valeurs d'activité du tritium ont varié dans une gamme de 1 à quelques milliers de Bq/L à l'aval des points de rejet d'effluents liquides des installations nucléaires, alors qu'aujourd'hui, cette activité mesurée dépasse rarement 100 Bq/L.

2|3|4| Le tritium dans le milieu marin

La concentration du tritium dans les eaux océaniques de surface devait être d'environ 0,1 Bq/L avant 1945. Elle a été plus que doublée du fait des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

Les apports industriels, en particulier ceux des usines de traitement de combustibles usés (La Hague en France et Sellafield en Grande-Bretagne), sont actuellement les principales sources de tritium pour les écosystèmes marins. A proximité de l'émissaire de rejet de l'usine de la Hague, qui est la principale source de tritium pour la Manche, la concentration moyenne du tritium mesurée dans l'eau de mer à la côte est d'environ 10 Bq.L⁻¹. Parmi les 14 000 mesures effectuées en mer par l'IRSN, dans le « panache » des rejets de l'usine, la concentration mesurée la plus élevée a été de 3600 Bq.L⁻¹ ; elle correspond à un rejet effectué une heure plus tôt. Les mesures de surveillance de routine ne permettent pas de détecter les contributions des autres installations nucléaires qui rejettent du tritium dans la Manche ; en effet, la mise en évidence de l'influence des rejets de tritium des centrales nucléaires côtières (Flamanville, Paluel, Penly et Gravelines) nécessiterait la mesure d'activités volumiques inférieures à 1 Bq/L, ce qui n'est pas possible avec la technique usuelle de mesure par scintillation (cf. 2.2.1).

L'activité du tritium mesurée dans des organismes marins (mollusques, poissons, crustacés) et des végétaux (algues) prélevés au voisinage de l'usine AREVA de la Hague varie entre environ 5 et 15 Bq/L, aussi bien pour le tritium libre (HTO) que pour le tritium lié à la matière organique (OBT ; voir aussi § 3).

En conclusion, l'IRSN considère que les nombreuses mesures réalisées dans l'environnement, principalement au voisinage des installations nucléaires, apportent une bonne connaissance des gammes de valeurs d'activité du tritium dans les différents milieux et montrent des évolutions globalement à la baisse au cours des 20 dernières années. Aujourd'hui, pour poursuivre l'observation de ces évolutions, il est nécessaire de recourir à des techniques de mesure permettant d'atteindre une limite de détection de l'ordre de 1 Bq/L, voire inférieure. C'est pourquoi l'IRSN est en train de se doter d'un équipement de mesure du tritium par l'hélium-3, répondant à cet objectif.

3 | Existe-t-il un risque de bioaccumulation de tritium au sein des écosystèmes ?

3.1 | Notions de bioaccumulation, de bioamplification et de rémanence

Le paragraphe 2.2 explique qu'il est possible de comparer les concentrations de tritium sous des formes moléculaires différentes (HTO vapeur, HTO liquide, OBT échangeable, OBT non échangeable) en les exprimant en termes d'activité de tritium par litre d'eau (Bq/L).

Compte tenu de la forte mobilité du tritium évoquée précédemment, que ce soit sous forme aqueuse ou dans les processus biologiques, on pourrait s'attendre à observer une mise à l'équilibre rapide des activités du tritium dans les différents compartiments en interface. En fait, ce n'est pas toujours le cas et il est possible d'observer des activités de tritium plus élevées dans des organismes vivants que dans leur milieu ambiant. Dès lors se pose la question de l'existence d'un éventuel phénomène de bioaccumulation, voire de bioamplification.

D'une manière générale, la bioaccumulation, également appelée bioconcentration, résulte d'un phénomène d'accumulation progressive d'un contaminant ou d'une substance toxique dans un organisme, à partir de diverses sources, y compris l'atmosphère, l'eau et les aliments. A l'échelle d'un organisme vivant, végétal ou animal, la bioaccumulation conduit à une concentration de la substance incorporée à un niveau plus important que dans les sources d'origine. La bioaccumulation d'une substance dans des structures tissulaires ou cellulaires particulières peut également conduire à des concentrations locales différant entre elles d'un à plusieurs ordres de grandeur.

Lorsque la concentration de la substance reste constante dans la source d'exposition, le phénomène de bioaccumulation se poursuit tant que la vitesse d'accumulation est plus importante que la vitesse d'élimination de la substance ; une fois que ces vitesses deviennent identiques, un état d'équilibre est atteint et détermine un niveau constant de concentration de la substance dans l'organisme. C'est le **facteur de bioaccumulation** (ou de bioconcentration), rapport entre la concentration dans l'organisme et celle de la source, qui caractérise cet état d'équilibre. Ainsi, en milieu aquatique, une bioaccumulation peut être mise en évidence lorsque, suite à une exposition durable à un contaminant à faible concentration dans l'eau, on observe une concentration plus importante dans l'organisme. Dans d'autres cas, lorsque la voie d'exposi-

tion est l'alimentation, il y a bioaccumulation lorsque la concentration du contaminant dans l'organisme exposé durablement est supérieure à celle mesurée dans son alimentation.

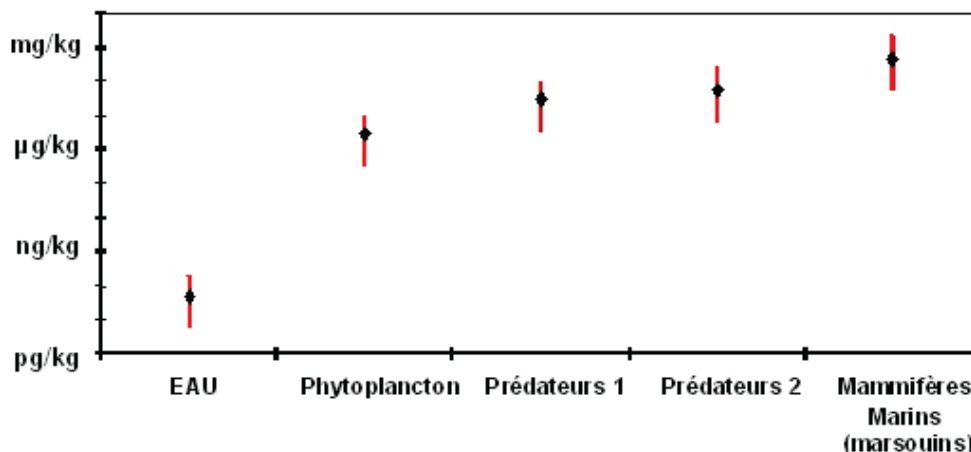
Si le phénomène se reproduit à chaque niveau d'une chaîne trophique, on parle alors de **bioamplification**, conduisant à une concentration de plus en plus élevée de la substance dans les organismes au fur et à mesure qu'on s'élève dans la chaîne trophique. A titre d'exemple, des phénomènes de bioaccumulation et de bioamplification peuvent être observés pour les PCB en milieu aquatique, ces substances ayant tendance à se fixer sur les graisses des organismes (figure 2).

Le facteur de bioaccumulation est souvent déterminé par le rapport des concentrations du contaminant dans l'organisme vivant (ou un de ses organes ou tissus) et dans le milieu ambiant (l'eau, le plus souvent). Parfois, il est défini en considérant la concentration du contaminant dans les aliments consommés par l'organisme, plutôt que celle du milieu ambiant ; il est alors plutôt dénommé « facteur de transfert trophique ».

Il convient d'être prudent dans l'interprétation des facteurs de bioconcentration obtenus à partir de mesures ponctuelles dans l'environnement ; en effet, le constat de valeurs supérieures à 1 ne signifie pas forcément qu'il y a bioaccumulation :

- si l'organisme vivant a été exposé dans son passé à des concentrations ambiantes plus importantes qu'actuellement, il peut exister une rémanence de cette contamination passée dans certains de ses tissus, induisant un déséquilibre apparent par rapport à la concentration actuelle du contaminant dans l'environnement, plus faible qu'autrefois. Ce phénomène se produit lorsqu'une substance se fixe dans l'organisme, à une concentration inférieure ou égale à celle de la source d'origine, et y reste plus ou moins durablement selon la vitesse d'élimination de la substance. La rémanence peut également être observée dans des milieux abiotiques (sols ou sédiments) lorsque des processus physico-chimiques conduisent à fixer durablement une substance dans le milieu (par exemple, le césium dans certains sols argileux) ;
- si l'organisme vivant est principalement exposé au contaminant via son alimentation et que celle-ci est exogène (venant d'une source extérieure au milieu de vie de l'organisme exposé), l'interprétation du facteur de concentration calculé à l'aide de la concentration du contaminant dans le milieu ambiant est biaisée ; il convient dans ce cas de calculer ce facteur à partir de la concentration mesurée dans les aliments avant de conclure sur une possible bioaccumulation.

Figure 2 – Illustration de la bioaccumulation et de la bioamplification des PCB dans des organismes marins (IFREMER – site internet). La concentration dans le phytoplancton (premier maillon de la chaîne trophique) est nettement supérieure à celle du milieu ambiant (eau) ; la concentration continue de croître dans les maillons suivants, traduisant une bioamplification via l'alimentation.



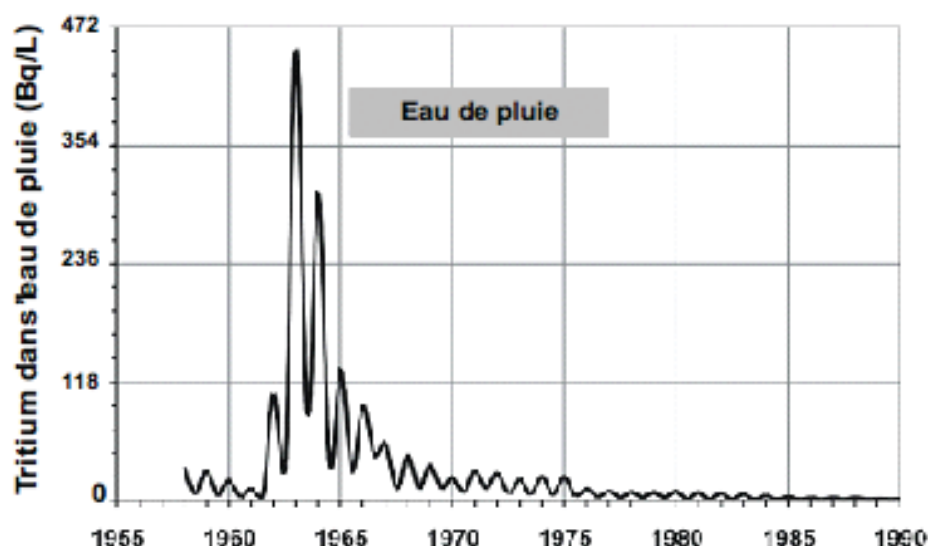
A la lumière des cas étudiés plus loin pour le tritium, les réserves exprimées ci-dessus concernant l'interprétation des facteurs de bioconcentration ont toute leur importance.

3|2| Interprétation des activités de tritium observées dans l'environnement

3|2|1| Comportement du tritium dans l'atmosphère

Le comportement du tritium dans l'air est bien connu grâce à de nombreuses mesures et sa modélisation ne soulève pas de difficulté spécifique, ce radionucléide étant principalement sous forme gazeuse (majoritairement de la vapeur d'eau ainsi que du gaz dihydrogène et du méthane). **D'une manière générale, le compartiment atmosphérique ne constitue pas un « réservoir » pérenne pour le tritium provenant des différentes sources** car le tritium interagit facilement avec les surfaces au sol : sols proprement dits, végétaux (photosynthèse) et hydrosphère (précipitation et évaporation). La figure 3 montre l'évolution importante de la concentration du tritium observée dans l'eau de pluie de l'hémisphère nord au cours des 50 dernières années, l'eau de pluie étant un bon indicateur de l'état du « stock » de tritium dans l'atmosphère.

Figure 3 – Courbe lissée représentant l'évolution de la concentration moyenne du tritium dans les eaux de pluies de l'hémisphère Nord (d'après AIEA, Isotope hydrology, 2006).



3|2|2| Comportement du tritium dans les sols

La présence de tritium dans les sols peut résulter de plusieurs processus, dont principalement les dépôts atmosphériques (incluant ceux dus à la pluie) et la formation d'une litière végétale évoluant en humus. Une particularité du tritium est de pouvoir être « réémis » dans l'atmosphère.

Il existe plusieurs approches pour la modélisation de ces interactions entre l'atmosphère et le sol :

- l'utilisation du concept de « vitesse de dépôt », selon lequel le flux de tritium vers la surface du sol est égal à la concentration de la vapeur d'eau tritiée (HTO) dans l'air, multipliée par la vitesse de dépôt ; dans ce cas, le processus de « réémission » est modélisé séparément, généralement en supposant qu'une fraction constante (par unité de temps) du tritium présent dans l'eau du sol s'évapore ;
- le calcul du « flux net d'eau tritiée », supposé proportionnel au gradient des concentrations volumiques de vapeur d'eau tritiée entre un niveau de référence, situé généralement à 1 m au-dessus du sol, et la surface du sol ;
- le calcul du « dépôt net de tritium » (bilan des apports et des pertes), modélisé par des coefficients de transfert constants.

La vitesse de dépôt du tritium est très variable selon la forme chimique du tritium, le mode de dépôt ou l'état des surfaces du sol. Par exemple, le tritium sous forme de vapeur d'eau (HTO) a une vitesse de dépôt relativement élevée mais, compte tenu du phénomène inverse d'émission du sol vers l'atmosphère (évaporation), la vitesse apparente de dépôt diminue rapidement par rapport à la vitesse initiale. Le dépôt humide de tritium, quant à lui, dépend directement des caractéristiques des pluies et doit être considéré séparément en termes de modélisation, sous peine de sous-estimer le dépôt global. Or il apparaît que beaucoup de modèles ne discriminent pas les conditions de formation du dépôt de tritium.

L'incorporation de tritium dans la matière organique des sols et son relâchement ultérieur par « réémission » ne sont pas encore bien connus. Une part significative du tritium lié à la matière organique des sols peut provenir directement du dépôt ou de la dégradation des parties aériennes des végétaux (chute de feuilles et formation d'une litière). **Dans ces conditions, il peut exister un déséquilibre important entre le tritium lié à la matière organique des sols et le tritium libre des sols.** Toutefois, l'ensemble des données disponibles indique que le sol n'est pas un compartiment d'accumulation pour le tritium, contrairement à ce qui est observé pour la plupart des autres radionucléides.

Un phénomène de rémanence, généralement faible, peut parfois être observé lorsque du tritium a été incorporé dans des végétaux grâce à la photosynthèse (voir le paragraphe suivant) et se retrouve ensuite dans les molécules organiques du sol issues de la décomposition des débris végétaux. En effet, diverses études montrent que la dégradation de la litière et la transformation de l'humus ont une cinétique lente et ce n'est qu'au cours du processus de minéralisation progressive de ces matières que le tritium lié à la matière organique peut être libéré, rejoindre le cycle de l'eau et, le cas échéant, être repris par les végétaux, via son évaporation à partir de la couche superficielle du sol.

3|2|3| Comportement du tritium dans les végétaux terrestres

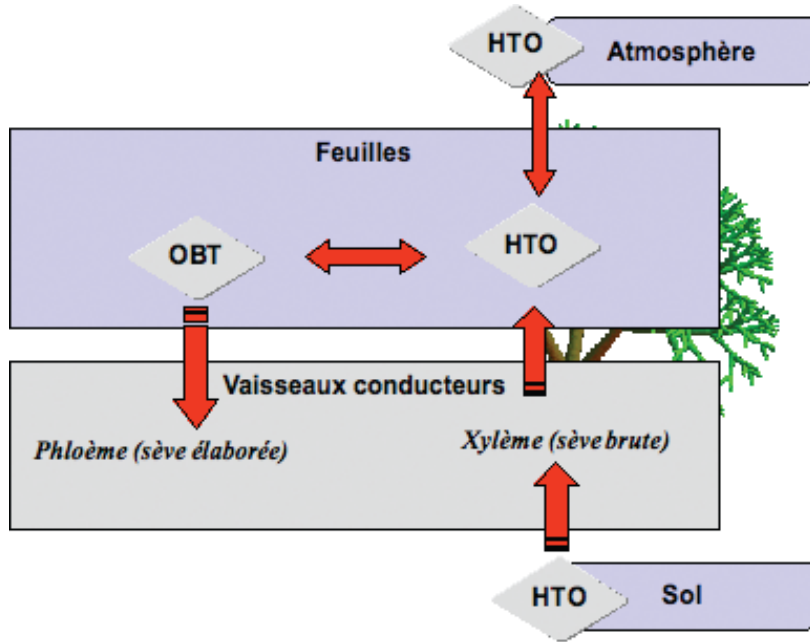
Le comportement du tritium dans les végétaux est contrôlé par deux processus majeurs qui sont, d'une part le fonctionnement hydrique du végétal, d'autre part la photosynthèse.

Le premier processus (fonctionnement hydrique) est déterminé principalement par l'absorption racinaire d'eau du sol puis le transport ascendant de celle-ci dans la plante jusqu'aux parties aériennes où s'effectue l'évapotranspiration. Cette dernière, qui fait intervenir des échanges avec l'atmosphère par les stomates, est largement contrôlée par les conditions météorologiques et climatiques (rayonnement, température, humidité de l'air...) et par le moment de la journée.

Un second processus important est la photosynthèse qui conduit à l'incorporation d'atomes d'hydrogène de l'eau (donc de tritium) dans des molécules organiques (voir § 2.1). Par ce processus, la concentration du tritium dans les molécules synthétisées (exprimée en Bq/L d'eau de combustion de la matière organique) est similaire à celle du tritium de l'eau libre du végétal, si on fait abstraction d'une éventuelle et faible séparation isotopique des atomes d'hydrogène en défaveur de l'incorporation de tritium au moment de la photosynthèse.

Le schéma de la figure 4 récapitule les principaux processus d'échange entre un végétal terrestre et son environnement (sol et atmosphère), en distinguant le tritium libre et le tritium organiquement liés.

Figure 4 - Modélisation simplifiée des transferts de tritium dans les arbres (Strack et al., 2005).



La concentration du tritium dans l'eau libre des feuilles de la plante (lieu de la photosynthèse) dépend de celle de la sève brute (xylème) transportant l'eau et les sels minéraux puisés dans le sol par les racines et des échanges avec la vapeur d'eau atmosphérique via les stomates des feuilles (régulation des échanges gazeux). Lorsque les plantes absorbent de la vapeur d'eau tritiée par voie foliaire, l'activité de l'eau dans les feuilles reste toujours inférieure à celle de la vapeur d'eau atmosphérique, même quand les expositions sont suffisamment longues pour arriver à un état d'équilibre dynamique, en raison de la dilution de l'eau des feuilles par l'eau qui provient du sol et qui est non contaminée ou moins contaminée que l'air. Les molécules organiques synthétisées dans les feuilles, avec leur part de tritium lié (échangeable ou non), sont elles-mêmes transformées en d'autres molécules par le métabolisme de la plante, puis transportées par la sève élaborée (phloème) vers les autres parties de la plante, y compris les racines. Certaines de ces molécules peuvent servir à fabriquer des tissus de structure (bois) ou de réserve (graines, tubercules...); dans ce cas, si du tritium a été incorporé au moment de la synthèse de ces molécules, via le sol ou par échange direct avec l'atmosphère, il peut persister durablement dans ces tissus, jusque bien après la fin de l'exposition de la plante au tritium de l'environnement. Le cas échéant, une partie de ces tissus de structure ou de réserve peut se retrouver dans la litière puis dans l'humus des sols (voir paragraphe précédent). **L'ensemble de ces phénomènes détermine une rémanence plus ou moins longue du tritium organiquement lié (et non échangeable) dans les végétaux mais ne peut en aucune façon être assimilé à de la bioaccumulation au sens défini au paragraphe 3.1.**

Ainsi, les données disponibles à l'IRSN concernant le tritium l'environnement terrestre tendent à montrer que, d'une manière générale, l'activité du tritium lié à la matière organique décroît avec une période effective³ proche de 6 ans pour les échantillons végétaux et animaux, et de 5 ans pour les sols. Cette période effective plus courte que la période radioactive du tritium permet de conclure qu'il n'y a pas de bioaccumulation dans les écosystèmes terrestres, le tritium ayant tendance à « disparaître » plus rapidement du fait des différents processus de transfert.

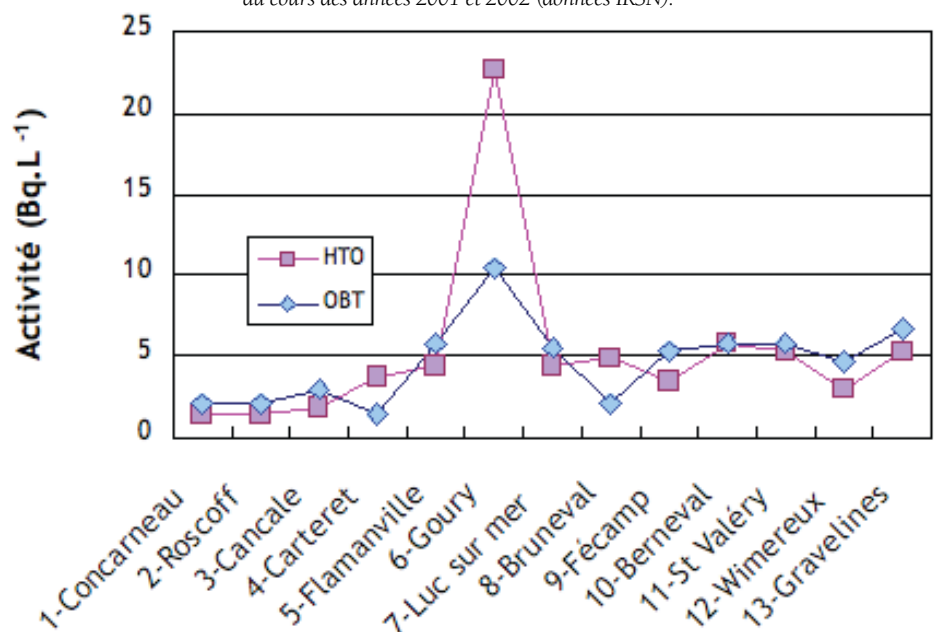
Les rares échantillons (feuilles d'arbres) qui présentent actuellement des activités de tritium organiquement lié un peu plus élevées que la moyenne proviennent de stations probablement influencées par un niveau d'activité ambiante plus élevé, actuel ou passé, avec une possibilité de rémanence dans ce type de végétaux, telle que décrite ci-dessus.

Le nombre d'études sur les situations de rémanence du tritium en France étant finalement faible, l'IRSN envisage de mener des études d'observation plus fine sur la répartition du tritium dans les végétaux, afin de disposer de données complémentaires. Toutefois, compte tenu des faibles activités de tritium généralement constatées dans l'environnement terrestre, de telles études nécessiteront de recourir à des techniques analytiques permettant d'atteindre des limites de détection suffisamment basses. Cette nécessité apporte un argument supplémentaire en

faveur de l'acquisition en cours à l'IRSN d'un nouvel équipement de mesure du tritium par l'hélium-3 (voir §2.3).

Remarque : les données pour le tritium relatives aux produits d'origine animale du milieu terrestre sont peu nombreuses et ce sont surtout des modèles physiologiques d'évolution du tritium (en fonction du comportement de l'eau et de la matière organique des animaux) qui ont été développés et qui ont fait l'objet de publications. Les mesures de tritium effectuées en France dans des échantillons de produits d'origine animale en milieu terrestre, ne montrent de valeurs particulièrement élevées. De plus, les facteurs de transfert sont toujours inférieurs à l'unité (et inférieurs à 0,5 pour le tritium ingéré par l'animal sous forme de matière organique végétale), ce qui va dans le sens d'une absence de bioaccumulation du tritium dans les denrées d'origine animale.

Figure 5 - Concentrations du tritium libre (HTO) mesurées dans l'eau de mer (Bq/L) et du tritium organiquement lié (OBT) mesurées dans des algues (Bq/L eau de combustion) entre Concarneau et Gravelines au cours des années 2001 et 2002 (données IRSN).



³ La période effective (Teff) d'un radionucléide dans un milieu donné représente la période au bout de laquelle, de façon statistique (analyse d'une série de mesures), la moitié de la quantité initiale du radionucléide présent dans ce milieu disparaît, sous l'effet conjugué de la décroissance radioactive (de période Trad) et de processus écologiques (agissant globalement selon une période Teco). La période effective dépend des deux autres périodes selon la relation suivante : $1/T_{eff} = 1/T_{eco} + 1/T_{rad}$. Si la période écologique est très grande (absence de processus écologique conduisant à la disparition du radionucléide du compartiment considéré), la période effective est proche de la période radioactive; à l'inverse, si la période effective est significativement plus courte que la période radioactive, cela signifie que des processus écologiques importants concourent à l'élimination du radionucléide du milieu considéré (transferts à d'autres compartiments).

3|2|4| Comportement du tritium dans les milieux aquatiques continentaux et marins

Les données relatives à la distribution du tritium dans les organismes aquatiques concernent surtout le milieu marin, tout particulièrement à proximité des côtes françaises de la Manche et des côtes britanniques (baie de Cardiff).

En zone littorale française de la Manche, l'IRSN a pu déterminer des profils de concentration du tritium libre et du tritium organiquement lié dans des algues (figure 5). Par rapport au bruit de fond mesuré dans l'Atlantique (Concarneau), les résultats montrent une influence des rejets de tritium de l'usine de traitement de combustibles usés d'AREVA La Hague en Manche, à partir du golfe normand-breton en direction du Pas-de-Calais. L'influence de l'usine s'observe surtout dans le Nord-Cotentin où les concentrations maximales mesurées atteignent une dizaine de Bq/L d'eau de combustion dans les algues (OBT). L'IRSN a obtenu d'autres résultats similaires lors de campagnes successives en Manche, pour divers organismes marins (algues, mollusques, crustacés et poissons). **D'une façon générale, les mesures de tritium faites dans divers organismes marins prélevés sur les côtes de la Manche au cours des deux dernières décennies montrent que le rapport entre l'activité du tritium organiquement lié des échantillons analysés et celle du tritium de l'eau de mer est proche de 1.** Il est même un peu plus faible pour le Fucus, sans doute en raison de l'influence des périodes d'exondation des algues à marée basse, pendant lesquelles des échanges pourraient avoir lieu avec la vapeur d'eau atmosphérique et l'eau de pluie dont l'activité de tritium est plus faible que pour l'eau de mer.

Des études britanniques, menées dans la baie de Cardiff et l'estuaire de la Severn, ont mis en évidence la présence d'activités de tritium dans des espèces marines (poissons plats, moules) dépassant de plus de cent fois l'activité de tritium dans l'eau de mer (Edwards, 1998). Tandis que les activités volumiques étaient à l'époque inférieures à 100 Bq/L dans l'eau de mer, une valeur de 37 800 Bq.kg⁻¹ frais a été constatée dans un poisson plat. L'estuaire de la Severn reçoit les rejets de l'usine Nycomed Amersham plc de Cardiff qui synthétise des molécules tritiées pour l'industrie pharmaceutique (acides aminés, acides gras, lipides, précurseurs acides nucléiques, hydrates de carbone, prostaglandines, vitamines, stéroïdes, alcaloïdes...). L'usage de ces molécules marquées est d'autant plus efficace que leur rapport isotopique ³H/H est plus élevé.

Lorsque ces composés ou des produits intermédiaires se retrouvent dans le milieu naturel, même à très faible concentration, ils ont une forte affinité pour la matière organique, et ce d'autant plus s'ils sont hydrophobes. Les auteurs des études précitées ont émis l'hypothèse d'une formation de matières organiques particulières par sorption des molécules organiques tritiées de l'eau sur les sédiments fins, complétée par une transformation bactérienne au sein du lit sédimentaire de surface. Les particules sédimentaires ainsi formées seraient alors filtrées par les moules ou ingérées par les poissons vivant en contact avec les sédiments. Les modes de vie et d'alimentation des organismes expliquent les différences d'activité observées entre d'une part les organismes herbivores ou benthiques, d'autre part les poissons pélagiques beaucoup moins contaminés par le tritium. Une fois ces aliments tritiés ingérés par les animaux, le tritium peut alors se fixer préférentiellement dans la matière vivante, entraînant un facteur de concentration très élevé par rapport au tritium libre (HTO) présent dans le milieu de vie de ces animaux.

Les molécules organiques marquées par du tritium peuvent rester stables lorsqu'elles sont enfouies dans la colonne sédimentaire, en l'absence de toute minéralisation. Ainsi, une étude britannique (Moris, 2006) a montré que les concentrations de tritium le long d'une carotte sédimentaire prélevée dans le marais de la Severn sont corrélées dans le temps

avec les activités de tritium rejetées par Amersham. Cet enregistrement chronologique suggère que le tritium organique est retenu pendant plusieurs décennies dans les sédiments après le dépôt, sans perte importante du fait de la conservation de la matière organique. Ce phénomène de rémanence est à rapprocher de celui décrit plus haut pour le tritium dans les matières organiques des sols provenant de la décomposition de la litière végétale.

Ainsi, les valeurs élevées des facteurs de concentration observées chez des organismes marins prélevés dans la baie de Cardiff et l'estuaire de la Severn ne correspondent pas à une bioaccumulation du tritium de l'eau de mer dans ces organismes, mais à une rémanence du tritium présent à des teneurs élevées dans des molécules organiques ingérées par ces organismes. Ce tritium se retrouve alors organiquement lié, à des concentrations élevées, dans les tissus des animaux avant d'être recyclé par le métabolisme de l'organisme et de se diluer peu à peu dans l'hydrogène stable de l'eau de mer ou de l'eau interne des organismes⁴.

Rappelons que toutes les mesures de tritium dans l'eau de mer réalisées à Sellafield, Bristol ou La Hague concernent le tritium « total » présent dans les prélèvements sans distinction des formes chimiques présentes, HTO et OBT, contrairement à ce qui est réalisé lors des mesures de tritium dans les organismes.

Cet exemple singulier de comportement du tritium, à l'origine d'une controverse sur l'existence éventuelle d'une bioaccumulation du tritium, montre l'intérêt de mieux déterminer les formes chimiques du tritium dans l'eau de mer, notamment le tritium lié à des molécules organiques (OBT), afin de permettre une interprétation correcte des facteurs de concentration calculés à partir des résultats de mesures dans les organismes marins. Ceci apparaît même indispensable lorsque des mesures mettent en évidence des concentrations de tritium élevées dans des organismes aquatiques ; en tout état de cause, les facteurs de concentration déterminés pour le tritium lié à la matière organique ne doivent pas être assimilés à des facteurs de bioaccumulation, tels que définis au paragraphe 3.1.

3|3| Conclusions sur la bioaccumulation du tritium

A ce jour, les différentes études menées sur le comportement du tritium dans l'environnement ne mettent pas en évidence une bioaccumulation du tritium, au sens strict du terme. En revanche, une rémanence plus ou moins longue du tritium peut être observée dans certains tissus végétaux après incorporation du tritium dans la matière organique par photosynthèse, et subséquentement dans les litières et matières humiques des sols provenant des végétaux. Cette rémanence reste modérée puisque, globalement, la période effective du tritium dans les organismes terrestres est significativement inférieure à la période radioactive du tritium.

De même, une rémanence de tritium peut être observée dans les organismes aquatiques lorsque le tritium rejeté dans l'environnement est lié à des molécules organiques. Il s'ensuit alors une contamination préférentielle des particules organiques sources alimentaires de certains animaux aquatiques qui se trouvent à leur tour contaminés à des concentrations significativement plus élevées que celles observées dans l'eau ambiante. Les facteurs de concentration déterminés par le rapport entre

⁴ Un processus semblable pourrait expliquer les activités relativement élevées de tritium organiquement lié (quelques dizaines à plus d'une centaine de Bq/L) observées dans divers organismes marins (algues, mollusques, crustacés et poissons) prélevés en Manche lors de la réalisation, par l'IPSN au début des années 1980, du point zéro radioécologique de la centrale nucléaire de Flamanville. Toutefois, en l'absence de mesures de tritium libre et de tritium dans l'eau de mer, cette interprétation doit être considérée avec prudence.

le tritium organiquement lié dans ces organismes et le tritium libre du milieu aquatique sont dès lors nettement supérieurs à 1, mais ne correspondent pas à une bioaccumulation.

L'usage de facteurs de concentration doit donc être fait avec prudence. Il s'agit d'indicateurs qui, lorsqu'ils s'écartent significativement de 1, doivent inciter à approfondir les études afin de mieux comprendre les mécanismes de transfert et de spéciation du tritium. En aucune façon ils ne doivent être assimilés à un facteur de bioaccumulation.

Rares sont les études et les données permettant de caractériser correctement la rémanence du tritium ; dans le contexte d'une controverse au sujet d'une possible bioaccumulation de tritium, l'IRSN estime qu'il est utile d'entreprendre des études permettant de mieux apprécier la rémanence du tritium :

- dans les végétaux, grâce au développement de mesures du tritium libre et du tritium organiquement lié, avec des limites de détection adaptées à la gamme des valeurs d'activité du tritium dans l'environnement ;
- dans les organismes aquatiques, en s'intéressant particulièrement à la spéciation du tritium dans les milieux de vie et au tritium fixé aux substances constituant l'alimentation de ces organismes.

Ces connaissances plus précises sur la rémanence du tritium et sur les mécanismes et paramètres associés permettront alors d'améliorer la modélisation du comportement du tritium dans les écosystèmes, en particulier :

- pour modéliser la fraction du tritium qui se retrouve incorporée ou piégée dans la matière organique lors de la photosynthèse : actuellement, les paramètres nécessaires à la prédiction précise des transferts restent rares et surtout éparses, en particulier pour des rejets ponctuels. La très grande variabilité du comportement du tritium en fonction de la durée des expositions des organismes au tritium et des paramètres environnementaux (humidité de l'air, état hydrique du végétal, jour/nuit, durée du rejet...) fait que chaque résultat d'essai donne des valeurs de paramètres spécifiques des conditions dans lesquelles a eu lieu l'expérimentation et donc difficilement généralisables. Ainsi, l'IRSN a entrepris de suivre, sur un cycle de trois ans, un écosystème prairial simplifié exposé aux rejets atmosphériques d'effluents tritiés de l'usine AREVA NC à La Hague. Ce suivi permettra de constituer une série de mesures sur la dynamique du tritium atmosphérique et du tritium libre et organiquement lié dans les principaux compartiments de l'écosystème constitué par le sol, la solution du sol et l'herbe ; les résultats seront ensuite utilisés pour améliorer la modélisation de la dynamique du tritium dans ce type d'écosystème terrestre ;
- pour compléter la modélisation du tritium en milieu aquatique, qui à ce jour ne tient compte principalement que des mécanismes de transport, de diffusion et de dispersion, et ce uniquement pour l'eau tritiée (HTO) de la colonne d'eau. Les interactions aux interfaces (air et sédiment) ainsi que la conversion de l'eau tritiée en tritium organiquement lié sont généralement ignorées, sans que leur importance soit véritablement connue. Concernant les transferts de tritium aux organismes aquatiques, la plupart des modèles disponibles reposent sur une approche d'équilibre isotopique, pour laquelle il a été prouvé qu'elle était généralement satisfaisante pour le tritium libre des tissus. La modélisation des concentrations de tritium organiquement lié dans les organismes aquatiques, moins répandue, est abordée de manière plus variable, avec parfois des approches dynamiques tenant compte des processus physiologiques. Ce sont d'ailleurs ces modèles qui donnent les résultats les plus proches des valeurs mesurées, lors des comparaisons modèles-mesures. Ils demandent cependant encore à être améliorés et validés. Dans ce contexte, l'IRSN prévoit d'entreprendre, à moyen terme, une série d'expérimentations en milieu contrôlé de façon à acquérir les données de base pour établir une modélisation plus avancée, tenant compte de la dynamique de rétention et d'élimination du tritium sous forme HTO et OBT. Pour cela, l'IRSN propose de s'intéresser au devenir du

tritium au sein de modèles biologiques clefs dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes aquatiques.

Ces développements devraient renforcer la capacité des modèles à prévoir la rémanence du tritium dans certains compartiments de l'environnement et, par conséquent, amélioreront la robustesse des expertises menées sur l'impact du tritium dans l'environnement.

4 | La connaissance des risques dus au tritium incorporé par les organismes vivants est-elle suffisante ?

Il s'agit d'une question qui touche à la fois l'évaluation du risque pour la santé de l'homme exposé au tritium (cf. rapport IRSN/DRPH -2009-18) et celle du risque pour les écosystèmes en présence de tritium.

Il convient de rappeler que le tritium est un radionucléide émetteur bêta pur, avec une énergie de rayonnement faible (5,7 keV en moyenne), d'où un faible pouvoir pénétrant (parcours libre moyen dans l'eau inférieur à 1 µm). Dans ces conditions, le tritium n'entraîne généralement pas de risque d'irradiation externe lorsqu'il est dispersé dans l'environnement, sauf éventuellement pour les organismes unicellulaires de petite taille, et la question de ses effets biologiques ne se pose que lorsqu'il est incorporé par des organismes vivants, végétaux ou animaux.

Le tritium étant un isotope radioactif de l'élément hydrogène, constituant majeur de la matière vivante, la question de ses effets sur les organismes vivants se pose de manière particulière lorsqu'il est lié à des molécules organiques, notamment lorsque celles-ci sont constitutives de l'ADN qui est une cible privilégiée des effets délétères des rayonnements ionisants. Trois aspects sont plus particulièrement discutés ci-après, dans le contexte de l'évaluation des risques du tritium pour les écosystèmes :

- l'influence de la spéciation du tritium sur l'évaluation des doses reçues par les organismes vivants ;
- les connaissances sur les effets nocifs du tritium et les relations exposition-effets ;
- l'efficacité biologique relative du rayonnement émis par le tritium.

4.1 | Prise en compte de la spéciation du tritium pour l'évaluation des doses reçues par les organismes vivants

La rémanence du tritium incorporé dans les organismes dépend fortement de la forme chimique de celui-ci – libre (HTO) ou organiquement lié (OBT) – au moment de son incorporation. Ainsi, chez les mammifères, la période biologique du tritium est en moyenne de 10 jours pour l'eau tritiée et peut varier de quelques jours à plusieurs années pour le tritium organiquement lié, en fonction du caractère labile des atomes d'hydrogène auxquels il se substitue dans les molécules organiques et de la durée de vie de celles-ci. Ainsi, selon les auteurs du rapport du groupe AGIR⁵, de nombreuses données tant animales qu'humaines suggèrent que l'élimination du tritium de l'organisme pourrait se faire en fonction de trois paramètres : le premier est relatif au tritium de l'eau corporelle ; le deuxième correspondant à la fraction de tritium liée à des composés organiques des tissus ; le troisième correspond à la fraction de tritium incorporée dans des composants structurels à faible taux de renouvellement. Ces paramètres déterminent une rémanence plus ou moins longue du tritium incorporé.

L'approche actuellement retenue pour évaluer l'exposition des organismes vivants au tritium présent dans leur environnement consiste à décrire les écosystèmes de manière simplifiée pour représenter la distribution du radionucléide au sein des habitats et les voies correspondantes

⁵ AGIR. Review of risks from tritium. Report of the Independent Advisory Group on Ionising Radiation. Health Protection Agency (2007)

d'exposition des organismes vivants, puis à utiliser des coefficients de dose unitaire déterminés par le calcul. Ces coefficients établissent une relation entre les activités des radionucléides soit dans les milieux de vie (exprimées en Bq/L ou Bq/kg), soit dans les organismes vivants (Bq/kg de tissu), selon la voie d'exposition considérée, et les doses ou les débits de dose absorbée (Gy ou Gy par unité de temps) reçus par les organismes. Ces coefficients ont été déterminés pour trois séries d'organismes de référence, animaux ou végétaux, respectivement pour les écosystèmes terrestre, aquatique continental et marin. Actuellement, les hypothèses soutenant leur mode de calcul ne sont valides que pour le tritium sous forme HTO dans le milieu d'exposition (distribution homogène) et la valeur déterminée est proche de 3.10^{-6} µGy/h par Bq/kg de tritium incorporé, pour l'exposition interne, quel que soit l'organisme considéré. Cela signifie qu'un organisme contaminé à hauteur de 10^6 Bq/kg (situation jamais observée dans l'environnement français) serait exposé à un débit de dose d'environ 3 µGy/h.

L'IRSN considère que la méthode actuellement utilisée pour déterminer les doses reçues par les organismes non humains exposés au tritium présent dans leur milieu de vie est très simplifiée et uniquement adaptée au tritium libre, en supposant une distribution homogène ; elle pourrait faire l'objet d'améliorations afin de mieux tenir compte du tritium organiquement lié auquel ces organismes pourraient être exposés. En effet, le tritium organiquement lié peut se trouver fixé à long terme dans des constituants cellulaires (rémanence) et irradier des cibles biologiques radiosensibles, notamment l'ADN, alors que celles-ci sont peu atteintes par le rayonnement émis par le tritium sous forme HTO, en raison du faible parcours moyen de ce rayonnement. En conséquence, l'IRSN estime que les éventuels effets biologiques du tritium organiquement lié ne sont pas correctement pris en compte dans les modèles dosimétriques applicables aux organismes vivant dans les différents écosystèmes en raison d'un déficit de données expérimentales à ce sujet. Ainsi, dans le cadre des expérimentations en milieu contrôlé projetées par l'IRSN, mentionnées au paragraphe 3.3, il est prévu d'étudier les effets de la rémanence du tritium à différentes échelles d'observation du vivant, en considérant les différentes formes de tritium dans la source d'exposition (eau tritiée, molécules organiques). Ces expérimentations porteront sur un nombre limité d'espèces représentatives des écosystèmes d'eau douce et marins : des microcrustacés (*Daphnia magna*), des vers nématodes (*Caenorhabditis elegans*) et des mollusques bivalves (*Crassostrea gigas* et *Mytilus edulis*). Les données acquises lors de ces expérimentations devraient permettre de savoir s'il est nécessaire de raffiner les modèles de calcul de dose ou, au contraire, s'il est acceptable de conserver des modèles simplifiés tels que ceux utilisés jusqu'à présent.

4|2| Connaissances sur les effets nocifs du tritium

Concernant les effets toxiques du tritium sur les organismes non humains, les données disponibles provenant d'études scientifiques ne portent que sur des animaux (invertébrés ou vertébrés) et principalement la forme HTO. Il n'existe aucune donnée relative à la toxicité du tritium pour des végétaux. Des travaux récents portant sur l'exposition au tritium d'un mollusque marin (*Mytilus edulis*) au stade de l'œuf et au stade adulte, ont mis en évidence une grande sensibilité de cette espèce à partir de certaines valeurs de débit de dose induit par le tritium incorporé : des dommages à l'ADN ont été observés à partir de 13 µGy/h et des conséquences cytogénétiques (aberrations chromosomiques) sont apparues de façon significative dès 1,3 µGy/h. Des effets sur le développement de *Daphnia magna* (micro-crustacé aquatique) rapportés dans la littérature ont été observés à partir de 3 µGy/h et s'aggravent au fil des générations. Les mécanismes à l'origine de ces effets et leurs conséquences écologiques sont méconnus à ce jour.

Il est important de souligner que les débits de dose pour lesquels des effets ont été observés pour ces espèces sont significativement plus faibles que la valeur de 10 µGy/h habituellement considérée

comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma. Même si ces débits de dose correspondent à des activités de tritium dans les milieux nettement plus élevées que celles observées dans l'environnement actuel, y compris auprès des installations nucléaires, il est nécessaire de conforter la robustesse des évaluations de risque du tritium sur les écosystèmes car :

- les débits de dose estimés à partir de la concentration du tritium dans le milieu de vie résultent de calculs simplifiés, réalisés sous l'hypothèse d'un équilibre instantanée (i.e., facteur de bioconcentration égal à l'unité) entre le milieu ambiant et l'organisme exposé au tritium ;
- les débits de dose ainsi calculés ne sont pas pondérés pour prendre en compte l'efficacité biologique du rayonnement bêta, par manque de connaissances à ce sujet (voir également § 4.1 et 4.3). Dans ces conditions, ils ne peuvent en principe pas être directement comparés à un débit de dose sans effet déterminé à partir de données d'écotoxicité chronique obtenues sous irradiation externe par des rayonnements gamma.

Ainsi, contrairement à ce qui est habituellement observé pour la toxicité des rayonnements gamma par irradiation externe, les données d'écotoxicité disponibles pour le tritium indiquent que ce sont les invertébrés et non les vertébrés qui apparaissent les plus sensibles. **Même si les niveaux d'exposition observés actuellement dans l'environnement ne laissent pas présager de risque significatif pour ces organismes, l'IRSN prévoit de poursuivre des recherches visant à mieux connaître les effets toxiques du tritium, en privilégiant l'étude des invertébrés aquatiques**, d'une part pour confirmer cette sensibilité plus élevée des invertébrés en élargissant la diversité des espèces testées, d'autre part, si cette confirmation est avérée, pour rechercher les mécanismes spécifiques à l'origine des effets constatés. L'IRSN prévoit également de mener des études expérimentales sur un invertébré ayant un court cycle de vie (*Daphnia magna* ou *Caenorhabditis elegans*) pour mieux comprendre et quantifier le risque d'induction et de transmission transgénérationnelle d'altérations génétiques, telles que rapportées dans la littérature scientifique.

Les données scientifiques issues de ces recherches devraient permettre de modifier ou d'adapter, si nécessaire, le critère actuellement considéré pour la protection écologique vis-à-vis des rayonnements ionisants, suite aux récents travaux européens (ERICA, 2006).

4|3| Connaissance de l'efficacité biologique relative (EBR) du tritium

L'EBR d'un type de rayonnement donné est défini par le rapport entre la dose de rayonnement de référence (X ou γ) et la dose du rayonnement à tester (le rayonnement β du tritium dans le cas présent) qui produisent le même effet biologique. L'expérience montre que l'EBR dépend de l'espèce animale ou végétale (ou du type de cellules) considérée, de l'effet biologique étudié et des conditions d'irradiation (type de rayonnement, dose, débit de dose, fractionnement des doses).

La notion d'EBR a principalement été historiquement développée pour la radioprotection humaine. A ce titre, il existe très peu de données concernant l'efficacité biologique relative du tritium pour les espèces non humaines autres que des mammifères ; par ailleurs, les critères d'effet dont la sensibilité relative au tritium par rapport à rayonnement gamma a été étudiée, portent essentiellement sur la survie cellulaire et l'apparition de dommages de l'ADN in vitro. Ils sont donc peu pertinents pour une interprétation sur un plan écologique, contrairement à des critères d'effet tels que ceux relatifs à la croissance ou à la capacité reproductive, directement interprétables en termes d'impact sur la démographie des populations d'espèces végétales ou animales.

⁶ Les effets biologiques de nature déterministe désignent les pertes de fonction d'organes ou de tissus apparaissant de manière systématique lorsque ces organes ou tissus reçoivent une dose dépassant un seuil donné. L'importance ou la gravité des pertes de fonction augmente avec la dose reçue au-delà de ce seuil.

Récemment, une compilation des valeurs d'EBR trouvées dans la littérature et une analyse de leur pertinence pour leur application aux cas des espèces non humaines et des effets biologiques de nature déterministe⁶ ont été publiées dans le cadre du projet ERICA (2006 ; pour plus de détails, voir le rapport IRSN/DEI-2009-05). Pour ce qui concerne spécifiquement le tritium (HTO ou molécules marquées), comme exposé précédemment, seules six études in vivo (7 valeurs d'EBR) existent ; elles concernent les effets du tritium sur la reproduction des vertébrés (mammifères et poissons) ; ces valeurs sont comprises entre 1 et 3,5.

S'agissant du calcul des doses reçues par les espèces non humaines exposées au tritium sous forme HTO, l'incertitude sur l'EBR (par rapport à un rayonnement gamma), si l'on suppose que sa valeur varie entre 1 et 3 quelle que soit la forme du tritium dans la source d'exposition, affecte le résultat de moins d'un ordre de grandeur, ce qui est peu en regard des incertitudes plus importantes qui existent dans la chaîne de calcul dosimétrique (facteurs de transfert, période biologique ; voir § 4.1) et dans la détermination des effets biologiques et écologiques en résultant.

L'IRSN observe qu'il n'existe pratiquement aucune donnée pour les expositions chroniques à l'eau tritiée et que les études relatives à l'EBR pour les formes organiques du tritium sont peu nombreuses pour les organismes non humains. Les espèces étudiées jusqu'à présent et leurs stades de vie sont peu diversifiés ; il en est de même pour les types d'effets biologiques explorés. La pertinence de la notion d'EBR pour les espèces non humaines, pour lesquelles les effets auxquels on s'intéresse sont de type déterministe, est actuellement mal connue. Pour toutes ces raisons, l'IRSN projette de mener des expériences en milieu contrôlé, à l'échelle des 4 ans à venir, pour acquérir des connaissances sur la sensibilité relative d'une exposition chronique au tritium sous différentes formes (HTO et molécules organiques marquées diverses) par rapport à une irradiation chronique gamma externe, en considérant des types d'effets pertinents d'un point de vue écologique (ex. survie, croissance, reproduction...). Ces expériences seront conduites sur un nombre limité de modèles biologiques clefs dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes aquatiques.

5 | Conclusions

L'IRSN estime que les processus physico-chimiques et biologiques déterminant le devenir du tritium, en tant qu'isotope radioactif de l'hydrogène, sont bien connus dans leur ensemble, à la fois dans le cycle de l'eau et dans les grandes fonctions métaboliques des organismes vivants (photosynthèse, métabolisme énergétique, anabolisme/catabolisme...). Aucun de ces processus n'est susceptible de conduire à concentrer davantage le tritium dans la matière organique que l'hydrogène stable dont il suit le même comportement. La bonne compréhension du devenir du tritium dans l'environnement nécessite de déterminer la forme chimique (appelée aussi « spéciation ») du tritium contenu dans les échantillons analysés. Les principales formes de tritium habituellement considérées dans les études environnementales sont :

- l'eau tritiée lorsque le tritium fait partie des molécules d'eau (HTO) qui peuvent partiellement se dissocier en T^+ et OT^- ; on parle également de « tritium libre » pour l'eau tritiée tissulaire (intra ou extracellulaire) d'un échantillon biologique ;
- le tritium organiquement lié (TOL) ou « organically bound tritium » (OBT), lorsque le tritium est lié à des molécules organiques ; il peut être alors soit facilement échangeable (TOL-E) avec l'hydrogène ambiant, comme par exemple le tritium associé à un radical acide, soit non-échangeable (TOL-NE) car fixé par une liaison covalente.

Les protocoles de traitement des échantillons prélevés dans l'environnement et les techniques analytiques associées permettent de quantifier de manière spécifique le tritium libre et le tritium lié à la matière organique, échangeable et non échangeable. Toutefois, la distinction de ces différentes formes de tritium n'est pas toujours faite dans les études publiées et, selon les laboratoires ou les auteurs de publications, l'« OBT » peut

signifier soit la totalité du tritium organiquement lié, soit uniquement sa fraction non échangeable, ce qui rend parfois difficiles les comparaisons des résultats de différents auteurs. Il est donc important que les résultats d'expérimentations en laboratoire ou de mesures in situ soient interprétés en tenant compte des protocoles de traitement des échantillons, ce qui suppose que ceux-ci soient décrits.

Il est également important d'harmoniser l'expression des résultats de mesure du tritium en fonction de leur usage :

- systématiquement en Bq/L, que ce soit pour HTO ou OBT, lorsqu'il s'agit d'étudier le devenir du tritium dans l'environnement ou de détecter une élévation éventuelle de l'activité du tritium dans l'environnement ;
- en Bq/kg_{fraîs}, Bq/L ou Bq/m³ lorsque les résultats sont utilisés pour faire des évaluations de doses dues à l'ingestion de produits tritiés (en distinguant la part liée à la matière organique, s'agissant des aliments) ou à l'inhalation.

La maîtrise de la qualité métrologique en laboratoire n'est pas une condition suffisante à l'obtention de résultats pertinents et une vigilance particulière doit être assurée dès l'étape de prélèvement des échantillons dans l'environnement, compte tenu de la forte mobilité du tritium, afin de prévenir les échanges incontrôlés de tritium avec le milieu ambiant avant analyse et d'éviter de se méprendre dans l'interprétation des résultats.

Depuis plusieurs décennies, de nombreuses mesures de tritium ont été réalisées dans l'environnement français, principalement au voisinage des installations nucléaires. Les résultats ainsi obtenus apportent une bonne connaissance des gammes des valeurs d'activité du tritium dans les différents milieux et montrent des évolutions globalement à la baisse au cours des 20 dernières années. Aujourd'hui, pour poursuivre l'observation de ces évolutions, il est nécessaire de recourir à des techniques de mesure permettant d'atteindre une limite de détection de l'ordre de 1 Bq/L, voire inférieure.

Dans un tel contexte, l'IRSN considère que le choix des techniques analytiques pour mesurer le tritium doit être adapté à l'objectif poursuivi :

- la technique de mesure par scintillation liquide, la plus couramment utilisée, est suffisante assurer une surveillance de routine visant à détecter rapidement toute élévation anormale de l'activité de tritium dans l'environnement ;
- par contre, pour suivre et comprendre le devenir du tritium dans l'environnement, il est nécessaire de recourir à des techniques plus fines (mesure par spectrométrie de masse de l'hélium-3), en distinguant systématiquement le tritium libre (HTO) et le tritium organiquement lié (OBT) dans les échantillons biologiques, dans les sols ou dans les sédiments.

Conformément aux orientations retenues par l'IRSN pour sa stratégie de surveillance de la radioactivité de l'environnement, l'IRSN est en train de se doter d'un équipement de mesure du tritium par l'hélium-3 qui lui permettra de maintenir son rôle de suivi de l'état radiologique de l'environnement et de développer un mode de surveillance complémentaire de celui appliqué par les exploitants nucléaires dans le cadre des prescriptions réglementaires qui s'imposent à eux.

A ce jour, les différentes études menées sur le comportement du tritium dans l'environnement ne conduisent pas à mettre en évidence de bioaccumulation du tritium. En revanche, une rémanence plus ou moins longue du tritium peut être observée dans certains tissus végétaux après incorporation du tritium dans la matière organique par photosynthèse et, subséquemment dans les litières et matières humiques des sols provenant des végétaux. Cette rémanence reste modérée puisque globalement, la période effective du tritium dans les organismes terrestres est significativement inférieure à la période radioactive du tritium.

De même, une rémanence de tritium peut être observée dans les organismes aquatiques lorsque le tritium rejeté dans l'environnement est lié à des molécules organiques. Il s'ensuit alors une contamination

préférentielle des particules organiques constituant l'alimentation de certains animaux aquatiques, qui se trouvent à leur tour contaminés à des concentrations significativement plus élevées que celles observées dans l'eau ambiante. Les facteurs de concentration déterminés par le rapport entre le tritium organiquement lié dans ces organismes et le tritium libre du milieu aquatique sont dès lors nettement supérieurs à 1, mais ne correspondent pas à une bioaccumulation.

L'IRSN estime que l'interprétation des facteurs de concentration déterminés dans les diverses études publiées doit être menée avec prudence. Il s'agit d'indicateurs qui, lorsqu'ils s'écartent significativement de 1, doivent inciter à approfondir les études afin de mieux comprendre les mécanismes de transfert et de spéciation du tritium. En aucune façon ils ne doivent être assimilés à un facteur de bioaccumulation.

L'IRSN constate que rares sont les études et les données permettant de caractériser correctement la rémanence du tritium. Dans le contexte d'une controverse au sujet d'une possible bioaccumulation de tritium rejeté par les activités nucléaires, l'IRSN estime qu'il est utile d'entreprendre des études permettant de mieux apprécier la rémanence du tritium :

- dans les végétaux, grâce au développement de mesures du tritium libre et du tritium organiquement lié, avec des limites de détection adaptées à la gamme des valeurs d'activité du tritium dans l'environnement ;
- dans les organismes aquatiques, en s'intéressant particulièrement à la spéciation du tritium dans les milieux de vie et au tritium fixé aux substances constituant l'alimentation de ces organismes.

Ces connaissances plus précises sur la rémanence du tritium et sur les mécanismes et paramètres associés permettront alors d'améliorer la modélisation du comportement du tritium dans les écosystèmes, en particulier pour modéliser la fraction du tritium qui se retrouve incorporée ou piégée dans la matière organique lors de la photosynthèse et pour compléter la modélisation du tritium en milieu aquatique, qui à ce jour ne tient compte principalement que des mécanismes de transport, de diffusion et de dispersion, et ce uniquement pour l'eau tritiée (HTO) de la colonne d'eau.

Concernant l'évaluation des risques pour les écosystèmes exposés au tritium présent dans l'environnement, l'IRSN considère que la méthode actuellement utilisée pour déterminer les doses reçues par les organismes non humains est très simplifiée et uniquement adaptée au tritium libre, en supposant une distribution homogène. L'IRSN estime également que les éventuels effets biologiques du tritium organiquement lié ne sont pas correctement pris en compte dans les modèles dosimétriques applicables aux organismes vivant dans les différents écosystèmes, en raison d'un déficit de données expérimentales à ce sujet. Or le tritium organiquement lié peut se trouver fixé à long terme dans des constituants cellulaires (rémanence) et irradier des cibles biologiques radiosensibles, notamment l'ADN, alors que celles-ci sont peu atteintes par le rayonnement émis par le tritium sous forme HTO, en raison du faible parcours moyen de ce rayonnement. L'IRSN envisage donc de réaliser des expérimentations en milieu contrôlé pour étudier les effets de la rémanence du tritium à différentes échelles d'observation du vivant, en considérant les différentes formes de tritium dans la source d'exposition (eau tritiée, molécules organiques).

L'efficacité biologique relative (EBR) du rayonnement émis par le tritium n'a été étudiée que pour quelques espèces animales, principalement des mammifères, et essentiellement pour le tritium sous forme HTO. Les études disponibles à l'heure actuelle ont permis d'estimer des EBR inférieurs à 3 pour les espèces non humaines. Dans ces conditions, si l'on suppose que l'EBR varie entre 1 et 3 quelle que soit la forme du tritium dans la source d'exposition, l'incertitude (par rapport à un rayonnement gamma) sur les résultats de calcul de dose serait de moins d'un ordre de grandeur, ce qui est peu en regard des incertitudes plus importantes qui existent dans la chaîne de calcul dosimétrique et dans la détermination des effets biologiques et écologiques en résultant. Toutefois, l'IRSN observe qu'il n'existe pratiquement aucune donnée pour les expositions chroniques à l'eau tritiée et que les études relatives à l'EBR pour les formes organiques du tritium sont peu nombreuses pour les organismes non humains. Les espèces étudiées jusqu'à présent et leurs stades de vie sont peu diversifiés ; il en est de même pour les types d'effets biologiques explorés. La pertinence de la notion d'EBR pour les espèces non humaines, pour lesquelles les effets auxquels on s'intéresse sont de type déterministe, est actuellement mal connue. Pour toutes ces raisons, l'IRSN projette de mener des expériences en milieu contrôlé sur un nombre limité de modèles biologiques clefs dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes aquatiques, pour acquérir des connaissances sur la sensibilité relative d'une exposition chronique au tritium sous différentes formes (HTO et molécules organiques marquées diverses) par rapport à une irradiation chronique gamma externe, en considérant des types d'effets pertinents d'un point de vue écologique (ex. survie, croissance, reproduction...).

Enfin, les données disponibles au sujet des effets toxiques du tritium sur les organismes non humains ne portent que sur des animaux et essentiellement la forme HTO. Certaines de ces données montrent que les débits de dose à partir desquels des effets biologiques ont été observés sur des invertébrés aquatiques sont significativement plus faibles que la valeur de 10 $\mu\text{Gy/h}$ habituellement considérée comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma : il s'agit notamment d'effets cytogénétiques (aberrations chromosomiques) apparaissant chez un mollusque marin (*Mytilus edulis*) exposé au tritium à un débit de dose dépassant 1,3 $\mu\text{Gy/h}$, ainsi que d'effets sur le développement de *Daphnia magna* (micro-crustacé aquatique) observés à partir de 3 $\mu\text{Gy/h}$ et s'aggravant au fil des générations. Les mécanismes et les conséquences écologiques de ces effets biologiques sont méconnus et, même si les niveaux d'exposition observés actuellement dans l'environnement ne laissent pas présager de risque significatif pour ces organismes, l'IRSN prévoit de poursuivre des recherches visant à mieux connaître les effets toxiques du tritium, en privilégiant l'étude des invertébrés aquatiques. Les données scientifiques issues de ces recherches devraient permettre de modifier ou d'adapter, si nécessaire, le critère actuellement considéré pour la protection écologique vis-à-vis des rayonnements ionisants.

Impact sur l'homme

Sommaire

- 242 Effets du tritium in utero (CEA)
- 245 Cell nucleus seeking OBT: a still neglected problem? (W.U. Müller)
TOL et noyau de la cellule : un problème encore négligé ? (W.U. Müller)
- 251 Les effets biologiques et sanitaires du tritium : questions d'actualité (ANCCLI)
- 256 Éléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium (IRSN)
- 265 Tritium : limites de rejets et impact (IRSN)
- 268 Le tritium, un risque sous-estimé (ACRO)
- 272 L'ANCCLI et le tritium (ANCCLI)

Effets du tritium in utero

L. Lebaron-Jacobs, A. Flûry-Hérard,
Direction des Sciences du Vivant - CEA

1 | Introduction

Quelle que soit son origine, le tritium est extrêmement mobile au niveau de tous les systèmes biologiques et dans l'environnement, et s'échange avec les atomes d'hydrogène au sein de molécules biologiques (ADN, protéines...).

Le tritium, émetteur bêta de faible énergie, est considéré comme un élément de faible radiotoxicité sur la base d'études expérimentales. Son parcours moyen dans l'eau est faible (0,56 μm). Néanmoins, des interrogations subsistent sur le niveau de risque à lui attribuer en raison de sa forte densité d'ionisation de répartition hétérogène : (1) répartition hétérogène de la dose absorbée au niveau tissulaire, cellulaire et même moléculaire (ADN) ; (2) densité d'ionisation élevée (TLE du tritium: 11,5 keV/mm comparé au TLE du ^{60}Co : 6,9 keV/mm) ; (3) grande hétérogénéité du dépôt d'énergie (moins de cellules sont atteintes que par un rayonnement gamma, mais plus nombreuses lésions intracellulaires) ; (4) plus grande fréquence de lésions double brins de l'ADN.

2 | Biocinétique du tritium

L'eau de boisson et l'alimentation sont des sources en eau tritiée et en tritium organiquement lié. D'après la publication n°56 de la Commission Internationale de Protection contre les Rayonnements ionisants (CIPR), l'apport alimentaire total en tritium est constitué d'environ 90% d'HTO et de 10% d'OBT (formes échangeables (échanges de l'hydrogène avec les groupements OH, SH...) et non échangeables) (ICRP, 1989). Compte tenu des sources d'OBT dans la biosphère, c'est l'ingestion qui apporte le tritium non échangeable (lié à un carbone par réaction enzymatique). Les études menées sur la biocinétique du tritium chez des rongeurs montrent que le comportement du OBT diffère de celui de l'HTO : cette dernière forme se répartit de manière homogène dans les liquides intra- et extracellulaires en suivant le parcours de l'eau, alors que l'OBT est plus abondant dans les cellules ayant de forts besoins énergétiques ou dans les tissus à renouvellement rapide. Au final, après incorporation et transformation des molécules tritiées sous forme d'OBT, on peut considérer qu'environ 9/10 est sous forme d'HTO et environ 1/10 sous forme d'OBT (échangeable et non échangeable).

Il n'y a pas d'accumulation significative de tritium chez l'homme. D'après un modèle élaboré par Etnier *et al.* (1984) revu par Hill et Johnson (1993), l'élimination du tritium chez l'adulte s'effectue selon les proportions et périodes respectives des trois composantes suivantes :

- 90,8 % du tritium incorporé suivent la période biologique de l'eau libre (environ 9,6 jours, avec des variations en fonction des apports hydriques) ;
- moins de 9 % du tritium incorporé suivent les périodes biologiques de composés organiques de renouvellement rapide (0,75 jour et 22 jours en moyenne, en fonction des sous-compartiments) ;
- moins de 1% du tritium incorporé suit la période biologique de composés organiques de renouvellement lent (450 jours environ).

L'excrétion est urinaire et fécale, essentiellement sous forme d'HTO (environ 99%), mais aussi sous forme d'OBT.

A partir des données métaboliques du tritium, la CIPR considère deux compartiments de « rétention » :

- l'HTO est rapidement transférée dans le sang en totalité : 97% reste sous forme d'eau tritiée et 3% passe dans le pool des OBT.
- sur les 10 % d'OBT alimentaire, environ la moitié des OBT ingérés sont oxydés dans le tube digestif et produisent de l'HTO ; l'autre moitié est transformée en molécules organiques tritiées de petite taille pouvant traverser la barrière digestive et passer directement dans le sang.

Cependant, de nombreuses données sur l'homme et l'animal soulignent l'intérêt d'identifier un troisième compartiment pour les molécules tritiées à élimination lente (jusqu'à 450 jours de période), correspondant au tritium incorporé dans des structures biologiques (ADN) de tissus à renouvellement lent (OBT non échangeable) (Harrison, 2002 ; Taylor, 2003).

3 | Dosimétrie du tritium

Pour estimer la dose reçue lors d'une incorporation de tritium, on utilise des coefficients de dose qui permettent de la calculer à partir de l'activité incorporée. Les coefficients de dose du tritium sont les plus faibles parmi ceux des radionucléides les plus fréquemment rencontrés dans l'environnement ($1,8 \cdot 10^{-11}$ Sv par Bq en cas d'ingestion d'eau tritiée et $4,2 \cdot 10^{-11}$ Sv.Bq⁻¹ pour les OBT). En 1978, la CIPR avait seulement pris en compte la forme HTO pour les travailleurs dans ses recommandations (Publication n°30), pour estimer les risques de cancers que peuvent représenter l'inhalation, l'ingestion ou l'absorption de tritium par la peau (ICRP, 1978). En 1989, un ajustement de ces recommandations, prenant en compte les nouvelles données expérimentales, a été réalisé (Publication n°56) : pour la première fois, ont été développés un modèle pour OBT et des recommandations pour les membres du public, notamment pour l'enfant. Les estimations de

risque chez l'enfant s'appuient sur l'analyse des données physiologiques d'équilibre hydrique en fonction de l'âge et sur les résultats d'études expérimentales de transfert d'HTO chez le jeune rat. Ainsi, chez l'enfant, en l'absence de données spécifiques dépendantes de l'âge, les mêmes extrapolations que pour l'HTO ont été effectuées pour l'OBT à partir de données obtenues chez l'adulte (ICRP, 1989).

En 2002, la biocinétique et la dosimétrie d'une exposition au tritium in utero ont été abordées dans les recommandations de la publication n°88 de la CIPR (2002). Chez l'embryon, la dose est analogue à celle de la paroi utérine ; chez le fœtus, la distribution dans les tissus est considérée comme analogue à celle du jeune enfant (trois mois). En fonction de l'âge fœtal, des valeurs de dose efficace ont été établies à partir de données expérimentales de transfert placentaire après ingestion de tritium par la mère avant ou pendant la grossesse. Ainsi, la dose efficace chez l'enfant est supérieure à celle de sa mère après exposition maternelle entre la conception et la fin de la grossesse. Malgré ces données biocinétiques et dosimétriques qui apparaissent relativement précises, les conséquences sanitaires d'une exposition in utero restent relativement méconnues.

4 | Effets du tritium in utero

Les données expérimentales proviennent essentiellement d'études cellulaires et animales après exposition à l'eau tritiée (HTO). En revanche, peu d'études analysent les conséquences biologiques de l'exposition à l'OBT. De plus, les résultats diffèrent fortement en fonction du protocole expérimental : il s'agit pour la plupart d'études sur des cellules en culture ou sur des modèles animaux exposés par injection intraveineuse de molécules tritiées. D'autre part, les doses et débits de dose utilisés sont élevés et rarement comparables, ce qui rend complexe l'interprétation de ces études. Enfin, on ne dispose pas actuellement de données expérimentales sur des expositions chroniques à faible débit et faible dose cumulée pour des expositions in utero ou chez le jeune rongeur.

Qu'il soit sous forme HTO ou de molécules organiques OBT, le tritium traverse aisément la barrière placentaire. Les mécanismes de prolifération, migration et différenciation étant étroitement liés chez l'embryon, l'apoptose et la mutagenèse engendrées localement par le rayonnement bêta du tritium peuvent avoir des conséquences fonctionnelles (altération de l'organogenèse) ou tumorigènes.

4.1 | Biocinétique

Après inhalation ou ingestion l'HTO passe complètement et rapidement dans la circulation maternelle et traverse le placenta. Chez le fœtus, le tritium se répartit dans tous les tissus. Au cours de la croissance in utero, les teneurs en eau diminuent alors qu'elles augmentent chez la mère (augmentation du pool d'eau corporelle et des graisses). Cette modification peut augmenter la période biologique de l'HTO chez la mère (12 jours environ en fin de grossesse au lieu de 9,6 jours). Les cinétiques de distribution de l'eau tritiée ont été étudiées sur différents modèles animaux (CIPR 88) : chez le fœtus, 3% de HTO se transforme en OBT (10% chez la mère) et les teneurs en HTO des tissus du nouveau-né correspondent à 65-70% des concentrations en HTO ingérée par la mère.

Toutes les molécules tritiées présentes dans le sang maternel traversent le placenta, puis le comportement biologique dépend de la forme, HTO ou OBT. Quelle que soit la forme chimique d'entrée, la distribution rapide aboutit à un équilibre entre concentration maternelle (CM) et concentration chez le fœtus (CF), tel que le rapport CF/CM est égal à 1,6 : le transfert vers le fœtus est un transport actif (CIPR 88). D'après les calculs de dose, la dose efficace chez le fœtus est supérieure à celle de la mère : un rapport de 1 à 2 est maximal pour une exposition maternelle à 10 semaines de grossesse.

Les études réalisées sur des modèles animaux in vivo ou in vitro, comparant les concentrations en tritium (libre ou lié) au niveau des tissus maternels et fœtaux après exposition à de l'eau tritiée ou à différents

composés organiques tritiés (alimentation), durant toute ou une partie de la gestation, montrent des différences en fonction des espèces et des protocoles expérimentaux. Ainsi, l'interprétation des résultats de ces études doit tenir compte des différences entre les espèces animales : les fœtus humains ont un rapport poids du cerveau/poids total plus élevé par rapport aux autres mammifères, ainsi qu'un poids du tissu adipeux plus important.

Des études expérimentales ont été réalisées chez le rat. La plupart des acides aminés subissent un transport actif au niveau des villosités placentaires. Les précurseurs de l'ADN (thymidine tritiée ou acides aminés tritiés) pourraient être préférentiellement incorporés dans l'ADN de cellules en multiplication active ou au niveau de protéines de structure. Cependant, cette incorporation préférentielle reste faible : 1,5 % de la totalité des OBT incorporés. D'autre part, ces concentrations fœtales sont similaires à celles retrouvées chez la mère (environ 2,5 %) (Takeda, 1991 et 1994).

4.2 | Conséquences sur la morphogenèse et le développement

La gravité des altérations fonctionnelles ou morphologiques du système nerveux central (SNC), observées chez les rongeurs (rat et souris), varie en fonction de l'âge gestationnel, des niveaux et de la durée d'exposition à du tritium. Une des difficultés dans l'analyse de ces données est leur caractère apparemment disparate quant à l'expression de la relation dose-effet et de la comparaison entre les études. En effet, suivant l'étude, la référence dosimétrique peut être soit l'activité totale incorporée par la mère, soit l'activité amenée par l'alimentation, soit une concentration dans l'eau de boisson, soit une dose estimée à tout ou partie du fœtus et à des âges variés. Cependant, il n'existe pas de facteur de conversion permettant de calculer la dose reçue par le fœtus en fonction de l'activité ingérée par la mère. Bien que la plupart des études s'attachent à conclure à une augmentation des effets avec l'exposition, il semble néanmoins difficile d'établir une réelle relation dose-effet sur la base de ces résultats et des incertitudes liés aux calculs dosimétriques. Ces précautions sont également à prendre en compte pour les études in vitro.

Diverses conséquences sur la morphogenèse et le développement ont été mises en évidence :

- des altérations de fonctions cognitives chez les jeunes rats après injections d'eau tritiée au 13^{ème} jour de gestation respectivement de 241, 482 et 1445 kBq/g de poids du corps de la mère (Gao, 1999 ; Wang, 1995) ;
- une réduction du nombre de cellules neurales après exposition de souris gestantes (13^{ème} jour) par injection intrapéritonéale d'eau tritiée à des concentrations de 482, 964, 1928 et 3854 kBq/g de masse corporelle. La réduction de la masse cérébrale est associée à une réduction du nombre de certaines cellules cérébrales (cellules pyramidales) (Sun, 1997 ; Gao, 1999) confirmant des études plus anciennes (Zamenhof, 1981 ; Zamenhof, 1990).

Sur le plan biologique, ces atteintes morphologiques sont corrélées à :

- une augmentation de la concentration de tritium dans le SNC de rats nouveaux nés, par rapport aux autres organes, après exposition à de l'eau tritiée (injection intra-péritonéale de 8,14 MBq/g), ainsi qu'une atrophie testiculaire avec destruction de la spermatogenèse (Yamada, 1996) ;
- une augmentation des lésions et de la mortalité par apoptose de neuroblastes au niveau du cervelet des fœtus de souris après exposition des mères à plusieurs dizaines ou centaines de kBq/mL d'HTO (eau de boisson), l'effet augmentant avec les doses cumulées (Jain, 1996) ;
- une augmentation du marquage de certains acides aminés (tryptophane) d'autant plus élevée qu'il s'agit d'une incorporation de molécules tritiées à des protéines cérébrales de rats exposés sur trois générations à de l'eau tritiée (37 kBq/mL) ou à une alimentation contenant 48,1 kBq/g d'OBT (Kowalska, 1985).

4|3| Etudes expérimentales in vitro

L'intérêt d'une analyse plus approfondie des effets du tritium (HTO et OBT) après exposition au cours du développement in utero a été souligné au regard des résultats expérimentaux des années 1970-80. Notamment, Müller et Spindle montrent une augmentation des aberrations chromosomiques après exposition in vitro de cellules embryonnaires au stade embryonnaire de quelques cellules (immédiatement avant ou après l'implantation des embryons de souris). De plus, les aberrations sont plus nombreuses après exposition à des précurseurs d'ADN ou acides aminés tritiés. Les molécules qui semblent les plus toxiques sont celles ayant une teneur en tritium plus élevée, comme l'arginine (Müller, 1986). Cependant, ces études réalisées in vitro ne sont pas nécessairement représentatives de la situation in vivo.

5| Conclusions

On s'aperçoit, au travers des études décrites ici, des difficultés de comparaison, du fait des disparités liées aux conditions expérimentales : concentrations utilisées en HTO ou OBT, modes d'incorporation, paramètres mesurés. De ce fait, il semble nécessaire de mettre en place une « dosimétrie du tritium » au niveau des organes contaminés (*in vivo*), ainsi qu'une microdosimétrie à l'échelle cellulaire (*in vitro*). La concentration en tritium (sous quelque forme qu'il soit) mesurée in fine au niveau de chaque organe est-elle vraiment représentative de la dose absorbée ?

D'autre part, il reste à réaliser, en particulier pour les formes de tritium organiquement lié et pour les expositions de tissus à croissance et renouvellement rapides (cas de l'embryon et du fœtus), des études sur les effets d'expositions chroniques (HTO ou OBT) à des concentrations environnementales (de l'ordre de la centaine ou du millier de Bq/L).

Enfin, il faudrait mettre en place une « normalisation » des protocoles expérimentaux afin de parvenir à comparer les études montrant ou non des effets du tritium.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Etnier EL., Travis CC., Hetrich DM. (1984) Metabolism of organically bound tritium in man, *Radiat Res* 100, 487-502.
- Gao W., Wang B., Zhou XY. (1999) Effects of prenatal low-dose beta radiation from tritiated water on learning and memory in rats and their possible mechanisms, *Radiat Res* 152, 265-272.
- Harrison JD., Khurseed A., Lambert BE. (2002) Uncertainties in dose coefficient for intakes of tritiated water and organically bound forms of tritium by members of the public, *Rad Prot Dos* 98, 299-311.
- Hill RL., Johnson IR (1993) Metabolism and dosimetry of tritium, *Health Phys* 65, 628-647.
- ICRP Publication 30 (1978) Limits for intakes of radionuclides by workers, Part 1. Ann ICRP 2(3/4) Pergamon Press, Oxford.
- ICRP Publication 56 (1989) Age-dependent doses to members of the public from intakes of radionuclide, Part 1, *Annals of the ICRP* 20(1) Pergamon Press, Oxford.
- ICRP Publication 88 (2001) Doses to the embryo and fetus from intakes of radionuclides by the mother, 31, n°1-3, Pergamon Press, Oxford.
- Jain N., Bhatia A. (1996) Radiobiological effects of low doses of tritiated water on developing mouse cerebellum from 17th day post-coitum, *Indian J of experimental Biology* 34, 891-984.
- Kowalska M. (1985) Incorporation of tritiated water (HTO) or Organically Bound Tritium (OBT) into amino acids of rat brain proteins, *J Rad Res* 26, 99-108.

Müller WU, Spindle A. (1986) Induction of sister chromatid exchange in preimplantation mouse embryos in vitro by ^3H -thymidine or ultraviolet light in combination with caffeine, *Teratog Carcinog Mutagen* 6, 107-114.

NCRP report n° 89 (1997) Genetic effects from internally deposited radionuclides, Bethesda, MD.

Sun X., Inouye M., Yamamura H., Fukui Y. (1997) Effects of prenatal treatment with tritiated water on the developing brain, *Int J Radiat Biol* 71, 309-313.

Takeda H. (1991) Incorporation and distribution of tritium in rats after chronic exposure to various tritiated compounds, *Int J Radiat Biol* 59, 843-853.

Takeda H., Nishimura Y., Inaba J. (1994) Transfer of tritium to prenatal and neonatal rats from their mothers exposed to tritiated compounds, *Radiat Prot Dosim* 53, 281-284.

Takahashi S. (1991) Distribution of tritium in rat conceptus cultured in vitro following brief administration of tritiated-thymidine, *Radiat Res* 128, 59-63.

Taylor DM (2003) A biokinetic model for predicting the retention of ^3H in the human body after intakes of tritiated water, *Radiat Prot Dosim* 105, 225-228.

Wang B., Zhou X. (1995) Effects of prenatal exposure to low-dose beta radiation from tritiated water on the neurobehavior of mice, *J Radiat Res* 36, 103-111.

Wang B., Watanabe K., Yamada T., Shima A. (1996) Effects of beta radiation from organically bound tritium on cultured mouse embryonic mid brain cells, *Health Phys.* 71, 915-921.

Wang B, Takeda H., Gao WM., Zhou XY., Okada T., Ohyama H., Yamada T., Hayara I. (1999) Induction of apoptosis by beta radiation from tritium compounds in mouse embryonic brain cells, *Health Phys* 77, 16-23.

Yamada K., Gotoh T., Ito A., Komatsu K. (1996) High level of tritium-remaining in brain of rats exposed to tritiated water as infants, *In Vivo* 10, 489-494.

Yamamoto O., Seyama T., Jo T., Terato H., Saito T., Kinomura A. (1995) Oral administration of tritiated water (HTO) in mouse. II. Tumour development, *Int J Radiat Biol* 68, 47-54.

Yin H., Bhattacharjee D., Roy G., Fujimoto N., Nakatani T., Ito A. (2002) Tumorigenesis in infant $\text{C}^3\text{H}/\text{HeN}$ mice exposed to tritiated water (HTO), *J Radiat Res* (Tokyo) 43, 345-351.

Zamenhof S., Marthens E. (1981) The effects of pre-and post-natal exposure to tritiated water for five generations on postnatal brain development, *Radiat Res* 85, 292-301.

Zamenhof S. (1990) Differential effects of chronic ingestion of tritiated water on prenatal brain development, *Radiat Res* 122, 101-103.

Cell nucleus seeking OBT: a still neglected problem?

TOL et noyau de la cellule : un problème encore négligé ?

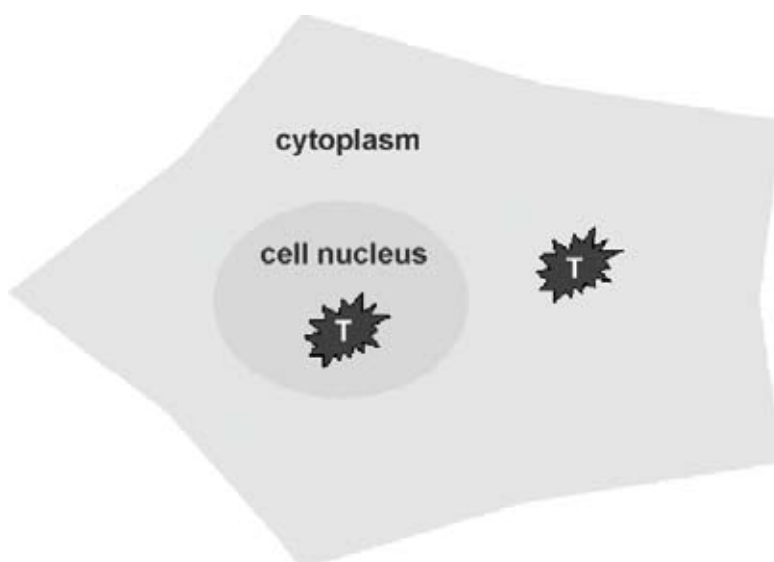
Wolfgang-Ulrich Müller¹

¹Institut für medizinische Strahlenbiologie
Universitätsklinikum Essen

1 | Background

It is well-known that organically bound tritium (OBT) is more dangerous to cells than HTO or HT (Diabate *et al.*, 1993). An increase in risk in the order of about 2 is discussed. Quite frequently, however, it is overlooked that the extent of risk very much depends on the specific chemical compound to which tritium is bound. The low-energy betamitter tritium (mean energy 5.7 keV) presents no threat to living organisms as long as its decay happens more than about 7 μm away from a critical target in an aqueous solution. This is the maximum range of its beta ray in water with an average of about 1 μm . The situation is completely different, when the decay occurs very close to a critical target or even within this target (Fig. 1). In the latter case, all of the energy is deposited in this crucial compartment resulting in comparatively high doses (Bond *et al.*, 1966) and correspondingly high effects.

Fig. 1: Energy deposition of a tritium decay in the cytoplasm and in the cell nucleus



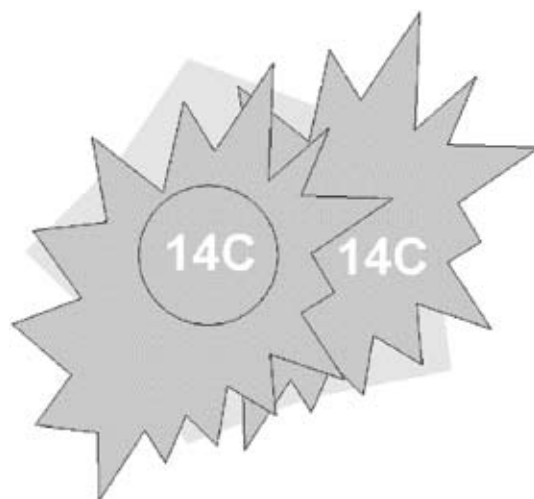
1 | Contexte

Il est connu que le tritium organiquement lié (TOL) est plus dangereux pour les cellules que l'eau tritiée (HTO) ou que l'hydrogène tritié (HT) (Diabate *et al.*, 1993). Une augmentation du risque de l'ordre de 2 est discutée. Tout à fait fréquemment, toutefois, il est négligé que l'augmentation du risque dépend beaucoup du composé chimique spécifique auquel le tritium est lié. Le tritium, émetteur bêta de basse énergie (énergie moyenne 5,7 keV) ne présente pas de menace pour les organismes vivants aussi longtemps que sa désintégration radioactive a lieu à environ 7 μm d'une cible critique en milieu aqueux. C'est la portée maximale de son rayonnement bêta dans l'eau, avec une portée moyenne d'environ 1 μm . La situation est complètement différente quand la désintégration se produit très près d'une cible critique ou même à l'intérieur de celle-ci (Fig. 1). Dans ce dernier cas, toute l'énergie est déposée dans ce compartiment crucial, impliquant des doses relativement élevées (Bond *et al.*, 1966) et des effets correspondants forts.

Fig. 1: Dépôt d'énergie d'une désintégration de tritium dans le cytoplasme et dans le noyau

The situation is different for a beta-emitter with a slightly higher energy like C-14 (mean energy 49.3 keV). If the C-14 decay occurs in the cell nucleus, most of the energy will be deposited outside of the nucleus (Fig. 2). This explains why C-14 labelled cell nucleus seeking compounds are less effective compared to tritiated ones (Simpson *et al.*, 1962).

Fig. 2: Energy deposition of a C-14 decay in the cytoplasm and in the cell nucleus (circle)



La situation est différente pour un émetteur bêta avec une énergie légèrement supérieure comme le carbone 14 (énergie moyenne 49,3 keV). Si la désintégration du carbone 14 se produit dans le noyau de la cellule, la plupart de l'énergie sera déposée en dehors du noyau (Fig. 2). Ceci explique pourquoi les molécules marquées en C-14 attirées par le noyau de la cellule ont moins d'effets comparées à celles marquées en tritium (Simpson *et al.*, 1962).

Fig. 2 : Dépôt d'énergie d'une désintégration de C-14 dans le cytoplasme et le noyau (cercle)

Several compounds show some or a lot of accumulation within the cell nucleus. This is particularly true for T-thymidine, because it is incorporated exclusively into DNA. One of the first publications to show that in HeLa cells this results in an about 1,000 times higher risk compared to HTO (based on the activities applied) appeared already in 1958 (Painter *et al.*, 1958). The other DNA precursors show similar effects, although to a slightly less extent, because they are also incorporated into RNA. There are some other candidates that play a role: those amino acids that are incorporated into histones or nuclear proteins in general. Here, again, there are some particularly efficient amino acids, like arginine and lysine, because their contribution to the histones is high, and tryptophane, because it is incorporated into nuclear non-histone proteins (Killen *et al.*, 1989).

Most of the tritium emitted into the environment is in the form of HT and HTO. Both molecules are of no threat at all, as long as they stay outside of the body and even after incorporation, doses to the cell nucleus will be low. But there are several pathways by which the tritium of HT and HTO can be incorporated into organic compounds:

Plusieurs molécules montrent un peu ou plus d'accumulation dans le noyau de la cellule. C'est particulièrement vrai pour la thymidine tritiée, parce qu'elle est incorporée exclusivement dans l'ADN. Une des premières publications, à montrer que dans les cellules HeLa cela amène un risque environ 1000 fois plus élevé que pour de l'eau tritiée (basé sur les activités appliquées), paru déjà en 1958 (Painter *et al.*, 1958). Les autres précurseurs de l'ADN montrent des effets similaires, bien qu'un peu moindres parce qu'ils sont aussi incorporés dans l'ARN. Il y a d'autres candidats qui jouent un rôle : les acides aminés qui sont incorporés dans les histones ou les protéines du noyau en général. Dans ce cas, à nouveau, il ya quelques acides aminés particulièrement efficaces, comme l'arginine et la lysine, parce que leur contribution aux histones est élevée, et le tryptophane, parce qu'il est incorporé dans les protéines non-histones du noyau (Killen *et al.*, 1989).

La plupart du tritium émis dans l'environnement est sous la forme HT ou HTO. Les 2 deux molécules sont sans danger aussi longtemps qu'elles restent en dehors de l'organisme, et même après l'incorporation, les doses au noyau de la cellule seront faibles. Mais il y a plusieurs voies par lesquelles le tritium de HT ou HTO peut être incorporé dans les molécules organiques (bactéries : action de l'hydrogénase ; plantes : action de la photosynthèse).

Bacteria:



Plants:



Production of various other OBTs
(e.g. T-thymidine, T-arginine)

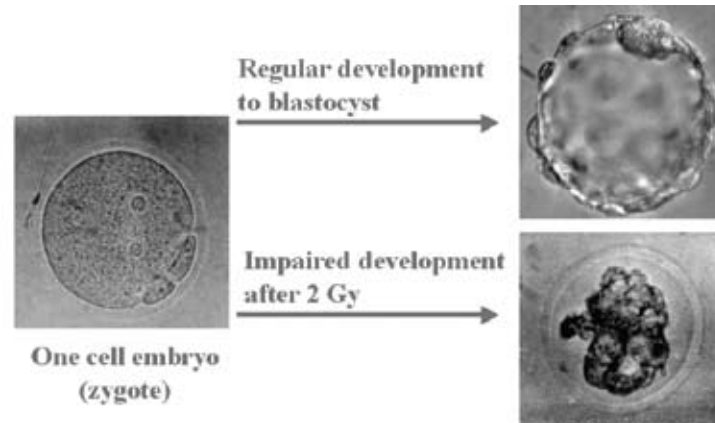
There is some information available in the literature that these conversions really happen (Diabate *et al.*, 1993), although it is hard to say, whether we have collected enough quantitative information to state that the tritiated cell nucleus seeking compounds are irrelevant for radiation protection aspects, because the conversion of HT and HTO into those compounds is negligible.

Il y a des informations dans la littérature sur l'occurrence réelle de ces conversions (Diabate *et al.*, 1993), bien qu'il soit difficile de dire, si nous avons collecté assez d'informations quantitatives pour statuer, que les molécules tritiées recherchées par le noyau sont hors de propos pour les aspects de radioprotection parce que la conversion de HT et HTO dans ces molécules est négligeable.

2 | Some results

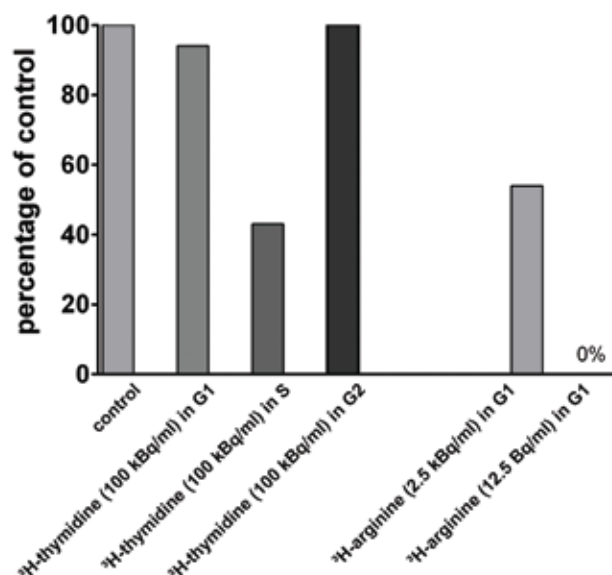
In the past a lot of experiments have been carried out looking for the effects of tritiated thymidine and various tritiated amino acids in preimplantation embryos (Fig. 3). Experiments using preimplantation mouse embryos are relevant in so far as almost all of the processes taking place during this stage of gestation are very similar among most mammals, including humans.

Fig. 3: Regular development of one cell mouse embryos to the stage of implantation and radiation effect on this process



All these experiments consistently showed a tremendously high effect on embryonic development (Clerici *et al.*, 1984; Horner *et al.*, 1974; Kelly *et al.*, 1976; Matsuda *et al.*, 1986; Müller *et al.*, 1986; Müller *et al.*, 1987; Müller *et al.*, 1996; Olsen *et al.*, 1987; Snow, 1973; Spindle *et al.*, 1982; Streffer *et al.*, 1977; Yamada *et al.*, 1988). Based on the activities applied, T-thymidine was about 1,000 times more effective than HTO (Streffer *et al.*, 1977) and some of the amino acids up to more than 40,000 (Killen *et al.*, 1989; Straume *et al.*, 1993). An important reason for the higher efficiency of some amino acids compared to thymidine depends on the fact that the amino acids are integrated into proteins irrespective of the cell cycle stage, whereas thymidine is incorporated into the DNA almost exclusively (with the exception of repair processes) during S-phase (Fig. 4). An additional aspect to note is the problem that some amino acids cannot be synthesized by humans, but have to be taken up by food (e.g. lysine, phenylalanine, tryptophane). And not only ribose and deoxyribose are derived from glucose (the major product of photosynthesis), but also purine and pyrimidine bases.

Fig. 4: Dependence of T-thymidine and T-arginine effects on cell cycle (Müller *et al.*, 1996)



Cell nucleus seeking OBT: a still neglected problem?

2 | Quelques résultats

Dans le passé, beaucoup d'expériences ont été menées en vue des effets de la thymidine tritiée et de différents acides aminés tritiés dans des embryons avant implantation (Fig. 3). Les expériences utilisant des embryons avant implantation de souris sont pertinentes dans la mesure où presque tous les processus se déroulant pendant cette période de la gestation sont très similaires pour la plupart des mammifères, y compris l'être humain.

Fig. 3 : Développement normal d'embryon monocellulaire de souris au stade de l'implantation et effets des radiations sur ce processus

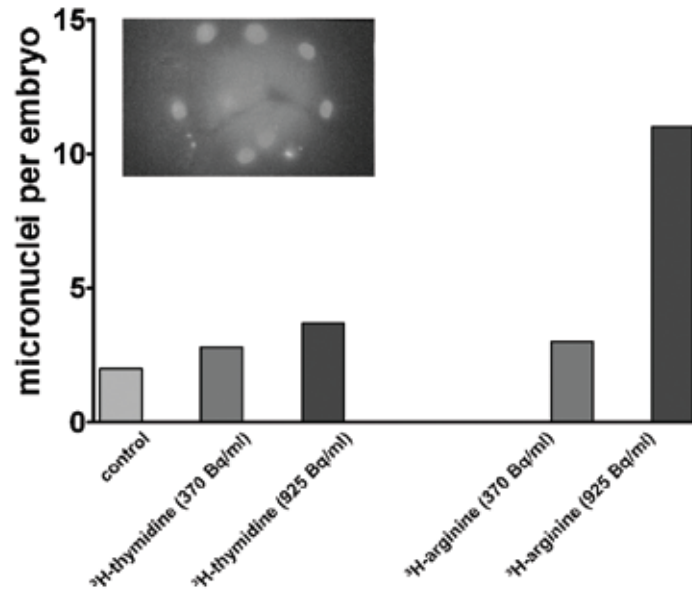
Toutes ces expériences montraient logiquement un effet très fort sur le développement embryonnaire (Clerici *et al.*, 1984; Horner *et al.*, 1974; Kelly *et al.*, 1976; Matsuda *et al.*, 1986; Müller *et al.*, 1986; Müller *et al.*, 1987; Müller *et al.*, 1996; Olsen *et al.*, 1987; Snow, 1973; Spindle *et al.*, 1982; Streffer *et al.*, 1977; Yamada *et al.*, 1988). Pour les mêmes activités utilisées, la thymidine tritiée était 1000 fois plus efficace que l'eau tritiée (Streffer *et al.*, 1977) et quelques acides aminés plus de 40 000 fois (Killen *et al.*, 1989; Straume *et al.*, 1993). Une raison importante pour la plus grande efficacité de quelques acides aminés comparée à celle de la thymidine dépend du fait que les acides aminés sont incorporés dans des protéines sans relation avec le stade du cycle cellulaire, alors que la thymidine est incorporée dans l'ADN presque seulement (à l'exception des processus de réparation) pendant le stade S (Fig. 4). Un aspect additionnel à noter est le problème que certains acides aminés ne peuvent pas être synthétisés par l'être humain, mais qu'ils doivent être fournis par la nourriture (p.ex. lysine, phénylalanine, tryptophane). Et ribose et désoxyribose ne sont pas seuls à être dérivés du glucose (le produit dominant de la photosynthèse), mais aussi les bases purine et pyrimidine.

Fig. 4: Dépendance des effets de la thymidine et de l'arginine tritiées sur le cycle cellulaire (Müller *et al.*, 1996)

(A 2 hour pulse was given at specific cell cycle stages of 1-cell embryos and cell numbers were determined 144 post conception; please, note the differences in activity applied.)

The tritium decay within the cell nucleus clearly induces damage within the DNA. This can be shown, for example, by the formation of micronuclei (Fig. 5). Again, T-arginine is more effective than T-thymidine.

Fig. 5: Micronucleus formation in embryos after exposure to T-thymidine and T-arginine (Müller *et al.*, 1987)



(The insert shows an 8-cell embryo with 3 micronuclei and 1 polar body)

(Un pulse de 2 heures était appliqué à des stades particuliers du cycle cellulaire d'embryons monocellulaires et le nombre de cellules était déterminé 114h après la conception ; noter les différences dans les activités appliquées.)

La désintégration du tritium à l'intérieur du noyau de la cellule induit clairement des dommages à l'intérieur de l'ADN. Ceci peut être montré, par exemple, par la formation de micro noyaux (Fig. 5). De nouveau, l'arginine tritiée est plus efficace que la thymidine tritiée.

Fig. 5: Formation de micro noyaux dans des embryons après une exposition à de la thymidine et de l'arginine tritiées (Müller *et al.*, 1987)

(La photo en encart montre un embryon de 8 cellules avec 3 micro noyaux et un corps polaire)

3 | Some specific aspects

1. It is true that most of the experiments have used rather high specific activities and it is to be expected and has been shown that lower specific activities result in smaller effects (Wiebold *et al.*, 1985). This does not mean that with lower specific activities effects do not occur; they may just decline somewhat. And one should keep in mind that the major reason for thresholds observed for deterministic effects, i.e. the necessity to kill or functionally inactivate many cells, does not apply to the 1-cell embryo!

2. Most of the experiments have been done in vitro. This means that metabolic influences are neglected. Balonov *et al.*, however, reported results on dominant lethal mutations after in vivo application of various tritiated compounds to mice (Balonov *et al.*, 1993). Among others, they found a 12 times higher risk after T-thymidine and a 6 to 7 times higher risk after application of tritiated L-lysine compared to HTO. These results are not as impressive as the in vitro experiments, but still markedly higher than HTO exposures.

3. One argument that is frequently used to claim that cell nucleus seeking compounds are of no relevance in radiation protection is the comment that based on the dose to the nucleus there is not much of a difference to HTO. It is completely correct that due to the accumulation of the decays within the cell nucleus, doses expressed in gray are very high. People, however, do not take up dose, but activities. Thus, it is important how many becquerel of a tritiated compound are consumed; after consumption this translates into dose that causes specific effects. The questions related to the RBE are important (Paquet *et al.*, 2009), but clarification of the RBE only is not sufficient in the case of cell nucleus seeking compounds.

3 | Quelques aspects spécifiques

1. Il est vrai que la plupart des expériences ont utilisé des activités plutôt élevées, et il doit être attendu et il a été montré que des activités plus basses conduisent à des effets plus faibles (Wiebold *et al.*, 1985). Cela ne signifie pas qu'avec de plus faibles activités les effets ne se produisent pas ; ils peuvent seulement quelque peu décroître. Et on doit garder en mémoire que la plus grande raison pour des seuils observés pour des effets déterministes, c'est à dire la nécessité de tuer ou d'inactiver fonctionnellement de nombreuses cellules, ne s'applique pas à un embryon au stade monocellulaire !

2. La plupart des expériences ont été réalisées in vitro. Cela signifie que les influences du métabolisme sont négligées. Toutefois, Balonov *et al.* ont rapporté des résultats sur des mutations dominantes létales après une application in vivo de différentes molécules tritiées à des souris (Balonov *et al.*, 1993). Parmi d'autres, ils ont trouvé un risque 12 fois plus grand avec de la thymidine tritiée et 6 à 7 fois avec de la L-lysine tritiée, par rapport à de l'eau tritiée. Ces résultats ne sont pas aussi impressionnant que ceux obtenus avec les expériences in vitro, mais ils sont plus élevés qu'avec des expositions à de l'eau tritiée.

3. L'argument fréquemment utilisé pour affirmer que les molécules recherchées par le noyau des cellules ne sont pas pertinentes pour la radioprotection est que par rapport à la dose au noyau, il n'y a pas beaucoup de différence avec l'eau tritiée. Il est tout à fait vrai que, étant donné l'accumulation des désintégrations dans le noyau de la cellule, les doses exprimées en Gray sont très élevées. Toutefois, les gens n'absorbent pas des doses, mais des activités. Ainsi, il importe de connaître combien de becquerels d'une molécule tritiée sont consommés ; ce qui se traduit en doses et en effets spécifiques. Les questions en rapport avec l'EBR sont importantes (Paquet *et al.*, 2009), mais l'éclaircissement sur l'EBR n'est pas suffisant dans le cas des molécules recherchées par le noyau.

4. Some people point to the fact that most of the results obtained up to now for the early stages of pregnancy are related to the death of the preimplantation embryo and that this is not “much of a concern”, because this effect, if it occurs, will be undetectable in real life. Besides the rather questionable ethical position, it is also premature to conclude that embryonic death is the only effect to be expected. Almost all of the studies have only looked at this effect, because this is methodologically the easiest way to run the experiments. This does not mean that other effects (malformations, solid tumours, leukaemia) are not to be expected. And at least for malformations, a threshold dose could not be detected after X-ray exposure in 1-cell embryos of those mouse strains that react with malformations after exposure of this stage (Müller *et al.*, 1994)

4. Quelques uns insistent sur le fait que la plupart des résultats obtenus jusqu'à présent pour les premiers stades de la grossesse ont un rapport avec la mort de l'embryon avant implantation et que ce n'est pas “d'un grand intérêt”, parce que cet effet, s'il a lieu, ne sera pas détectable dans la vie réelle. Mis à part la position éthique plutôt questionnable, il est aussi prématuré de conclure que la mort de l'embryon est le seul effet attendu. Presque toutes les études ont seulement examiné cet effet, parce que c'est sur le plan méthodologique la façon la plus simple de conduire l'expérience. Cela ne signifie pas que d'autres effets (malformations, tumeurs massives, leucémies) ne sont pas à être attendus. Et au moins pour les malformations, une dose seuil ne pouvait pas être détectée après une exposition aux rayons X d'embryons monocellulaires de ces lignées de souris, qui réagissent par des malformations après une exposition à ce stade (Müller *et al.*, 1994).

4 | A final remark

This overview does not “prove” that cell nucleus seeking OBTs present an extraordinarily high hazard in the environment. But those compounds are clearly more dangerous than HTO or HT, and therefore one should be sure that the risk is acceptable or, even better, non-existent, before one releases high amounts of tritium into the environment.

4 | Une remarque finale

Cette revue ne “prouve” pas que les molécules marquées au tritium recherchées par le noyau de la cellule représentent un danger élevé extraordinaire dans l'environnement. Mais ces molécules sont clairement plus dangereuses que HTO ou HT, et par conséquent on devrait être sûr que le risque est acceptable ou, encore mieux, inexistant, avant de libérer des niveaux élevés de tritium dans l'environnement.

REFERENCES

- Balonov M.I., Muksinova K.N., Mushkacheva G.S. (1993) Tritium radiobiological effects in mammals: review of experiments of the last decade in Russia, *Health Physics* 65, 713-726.
- Bond V.P., Feinendegen L.E. (1966) Intracellular ^3H thymidine: Dosimetric, radiobiological and radiation protection aspects, *Health Physics* 12, 1007-1020.
- Clerici L., Carroll M.J., Merlini M., Vercellini L., Campagnari F. (1984) The toxicity of tritium: the effects of tritiated amino-acids on preimplanted mouse embryos, *International Journal of Radiation Biology* 45, 245-250.
- Diabate S., Strack S. (1993) Organically bound tritium, *Health Physics* 65, 698-712.
- Horner D., McLaren A. (1974) The effect of low concentrations of [^3H]-thymidine on pre- and postimplantation mouse embryos, *Biology of Reproduction* 11, 553-557.
- Kelly S.J., Rossant J. (1976) The effect of short-term labelling in [^3H] thymidine on the viability of mouse blastomeres: alone and in combination with unlabelled blastomeres, *Journal of Embryology and Experimental Morphology* 35, 95-106.
- Killen H.M., Carroll J. (1989) The effects of tritium on embryo development: the embryotoxic effects of [^3H]tryptophan, *International Journal of Radiation Biology* 56, 139-149.
- Matsuda Y., Yamada T., Tobari I. (1986) Chromosome aberrations induced by tritiated water or ^{60}Co gamma-rays at early pronuclear stage in mouse eggs, *Mutation Research* 160, 87-93.
- Müller W.-U., Heckeley N., Streffer C. (1996) Effects of cell cycle specific exposure to ^3H -thymidine or ^3H -arginine on development and cell proliferation of mouse embryos, *Radiation and Environmental Biophysics* 35, 267-271.
- Müller W.-U., Spindle A. (1986) Induction of sister chromatid exchange in preimplantation mouse embryos in vitro by ^3H -thymidine or ultraviolet light in combination with caffeine, *Teratogenesis, Carcinogenesis, and Mutagenesis* 6, 107-114.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Balonov M.I., Muksinova K.N., Mushkacheva G.S. (1993) Tritium radiobiological effects in mammals: review of experiments of the last decade in Russia, *Health Physics* 65, 713-726.
- Bond V.P., Feinendegen L.E. (1966) Intracellular ^3H thymidine: Dosimetric, radiobiological and radiation protection aspects, *Health Physics* 12, 1007-1020.
- Clerici L., Carroll M.J., Merlini M., Vercellini L., Campagnari F. (1984) The toxicity of tritium: the effects of tritiated amino-acids on preimplanted mouse embryos, *International Journal of Radiation Biology* 45, 245-250.
- Diabate S., Strack S. (1993) Organically bound tritium, *Health Physics* 65, 698-712.
- Horner D., McLaren A. (1974) The effect of low concentrations of [^3H]-thymidine on pre- and postimplantation mouse embryos, *Biology of Reproduction* 11, 553-557.
- Kelly S.J., Rossant J. (1976) The effect of short-term labelling in [^3H] thymidine on the viability of mouse blastomeres: alone and in combination with unlabelled blastomeres, *Journal of Embryology and Experimental Morphology* 35, 95-106.
- Killen H.M., Carroll J. (1989) The effects of tritium on embryo development: the embryotoxic effects of [^3H]tryptophan, *International Journal of Radiation Biology* 56, 139-149.
- Matsuda Y., Yamada T., Tobari I. (1986) Chromosome aberrations induced by tritiated water or ^{60}Co gamma-rays at early pronuclear stage in mouse eggs, *Mutation Research* 160, 87-93.
- Müller W.-U., Heckeley N., Streffer C. (1996) Effects of cell cycle specific exposure to ^3H -thymidine or ^3H -arginine on development and cell proliferation of mouse embryos, *Radiation and Environmental Biophysics* 35, 267-271.
- Müller W.-U., Spindle A. (1986) Induction of sister chromatid exchange in preimplantation mouse embryos in vitro by ^3H -thymidine or ultraviolet light in combination with caffeine, *Teratogenesis, Carcinogenesis, and Mutagenesis* 6, 107-114.

Müller W.-U., Streffer C., Molls M., Glück L. (1987) Radiotoxicities of ^3H -thymidine and of ^3H -arginine compared in mouse embryos in vitro, *Radiation Research* 110, 192-198.

Müller W.-U., Streffer C., Pampfer S. (1994) The question of threshold doses for radiation damage: malformations induced by radiation exposure of unicellular or multicellular preimplantation stages of the mouse, *Radiation and Environmental Biophysics* 33, 63-68.

Olsen W.M., Storeng R. (1987) Effects of ^3H -thymidine on preimplantation mouse embryos in vitro, *Pharmacology & Toxicology* 61, 203-208.

Painter R.B., Drew R.M., Hughes W.L. (1958) Inhibition of HeLa growth by intranuclear tritium, *Science* 127, 1244-1245.

Paquet F., Metivier H. (2009) Are the risks from tritium exposures being underestimated?, *J.Radiol.Prot.* 29, 175-181.

Simpson L., Bennett L.L. (1962) Biological effects of carbon-14 incorporated into nucleic acids of mouse embryos, *Radiation Research* 17, 145-157.

Snow M.H.L. (1973) Abnormal development of pre-implantation mouse embryos grown in vitro with ^3H -thymidine, *Journal of Embryology and Experimental Morphology* 29, 601-615.

Spindle A., Wu K., Pedersen R.A. (1982) Sensitivity of early mouse embryos to [^3H] thymidine, *Experimental Cell Research* 142, 397-405.

Straume T., Carsten A.L. (1993) Tritium radiobiology and relative biological effectiveness, *Health Physics* 65, 657-672.

Streffer C., Elias St., van Beuningen D. (1977) Comparative effects of tritiated water and thymidine on the preimplanted mouse embryo during cultivation in vitro, *Current Topics in Radiation Research Quarterly* 12, 182-193.

Wiebold J.L., Anderson G.B. (1985) Lethality of a tritiated amino acid in early mouse embryos, *J.Embryol.Exp.Morphol.* 88, 209-217.

Yamada T., Ohyama H (1988), Effects of organically bound tritium (OBT) on pre-implantation mouse embryos in vitro, in Proceedings of the 3rd Japan-US Workshop on Tritium Radiobiology, p 274-279

Müller W.-U., Streffer C., Molls M., Glück L. (1987) Radiotoxicities of ^3H -thymidine and of ^3H -arginine compared in mouse embryos in vitro, *Radiation Research* 110, 192-198.

Müller W.-U., Streffer C., Pampfer S. (1994) The question of threshold doses for radiation damage: malformations induced by radiation exposure of unicellular or multicellular preimplantation stages of the mouse, *Radiation and Environmental Biophysics* 33, 63-68.

Olsen W.M., Storeng R. (1987) Effects of ^3H -thymidine on preimplantation mouse embryos in vitro, *Pharmacology & Toxicology* 61, 203-208.

Painter R.B., Drew R.M., Hughes W.L. (1958) Inhibition of HeLa growth by intranuclear tritium, *Science* 127, 1244-1245.

Paquet F., Metivier H. (2009) Are the risks from tritium exposures being underestimated?, *J.Radiol.Prot.* 29, 175-181.

Simpson L., Bennett L.L. (1962) Biological effects of carbon-14 incorporated into nucleic acids of mouse embryos, *Radiation Research* 17, 145-157.

Snow M.H.L. (1973) Abnormal development of pre-implantation mouse embryos grown in vitro with ^3H -thymidine, *Journal of Embryology and Experimental Morphology* 29, 601-615.

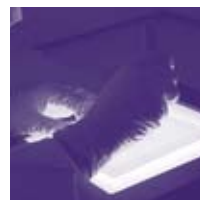
Spindle A., Wu K., Pedersen R.A. (1982) Sensitivity of early mouse embryos to [^3H] thymidine, *Experimental Cell Research* 142, 397-405.

Straume T., Carsten A.L. (1993) Tritium radiobiology and relative biological effectiveness, *Health Physics* 65, 657-672.

Streffer C., Elias St., van Beuningen D. (1977) Comparative effects of tritiated water and thymidine on the preimplanted mouse embryo during cultivation in vitro, *Current Topics in Radiation Research Quarterly* 12, 182-193.

Wiebold J.L., Anderson G.B. (1985) Lethality of a tritiated amino acid in early mouse embryos, *J.Embryol.Exp.Morphol.* 88, 209-217.

Yamada T., Ohyama H (1988), Effects of organically bound tritium (OBT) on pre-implantation mouse embryos in vitro, in Proceedings of the 3rd Japan-US Workshop on Tritium Radiobiology, p 274-279



Les effets biologiques et sanitaires du tritium : questions d'actualité

S. Gazal¹, C. Chenal², J.C. Amiard³ - Membres du Comité Scientifique de l'Association Nationale des comités et commissions locales d'information (ANCCLI)

¹ UMR CNRS 5263, CLLE, Laboratoire Travail et Cognition, Université de Toulouse 2.

² UMR CNRS 6553, ECOBIO, Equipe Radiations, Environnement, Adaptation, Université de Rennes 1.

³ EA2160, MMS, Service d'Ecotoxicologie, Université de Nantes.

1 | Introduction

Sous l'effet d'événements collectifs aux conséquences délétères avérées ou potentielles, et dans le contexte d'une société à plusieurs titres vulnérable, les notions de risque technologique et de prévention ont émergé comme des objets sociaux et politiques majeurs.

Dans ce contexte, l'augmentation prévisible des rejets en tritium par l'industrie nucléaire civile suscite des interrogations et une demande pressante d'information, au niveau notamment de leur impact sanitaire.

Pour essayer de répondre à cette demande, il convient d'interroger les données relatives à l'impact biologique et sanitaire du tritium et de faire apparaître l'ensemble des questions qui sont susceptibles de se poser à son sujet.

Nous évoquerons dans un premier temps les concepts, données et connaissances qui fondent aujourd'hui la radioprotection et singulièrement la radioprotection du tritium, et dans un second temps nous en souligneront les limites.

Les effets sanitaires d'une exposition aux rayonnements ionisants sont classés selon trois critères : le moment de leur apparition (effets précoces/tardifs), la cible du dommage (le sujet irradié/sa descendance) et leur caractère aléatoire ou déterministe¹. Les effets considérés aujourd'hui comme aléatoires sont les cancers et les effets héréditaires, les autres types d'effets étant considérés comme déterministes. Ils sont censés apparaître après des expositions dont le niveau est inférieur aux niveaux d'apparition des effets déterministes, le principe étant retenu d'une relation linéaire sans seuil.

Outre la définition d'une limite de dose efficace engagée, la radioprotection individuelle reposera donc d'une part sur l'évaluation d'une relation dose efficace engagée / effets aléatoires, et d'autre part sur la définition de coefficients de dose efficace engagée (pour la contamination interne, de doses par unités d'incorporation = DPUI).

Les effets étudiés sont les effets cliniques, mais également les effets biologiques précoces subis par le noyau ou par d'autres constituants

de la cellule (membrane...) et qui, par-delà la mort cellulaire, peuvent être à l'origine d'effets cliniques notamment aléatoires (cancers, effets héréditaires). Quatre types d'approche sont susceptibles d'être mis en œuvre pour identifier et quantifier ces effets.

Quelles sont les données et connaissances disponibles concernant une contamination par le tritium ?

2 | Les données disponibles concernant la relation dose-effet et la définition des DPUI du tritium

2.1 | Les données disponibles en épidémiologie humaine et en expérimentation animale

Plusieurs études épidémiologiques, qui portent essentiellement sur les travailleurs et plus rarement sur les populations riveraines d'installations nucléaires (donc exposés de manière chronique à de faibles doses et de faibles débits de dose de tritium) font apparaître une sur incidence ou une surmortalité de/par différents types de cancers (prostate, rectum, voies urinaires, leucémies). Mais elles présentent pour la plupart des biais méthodologiques importants (absence de dosimétrie tritium, expositions multiples, puissance statistique de l'étude, effet du travailleur sain...) qui ne permettent pas d'imputer ces observations à l'exposition au tritium. Néanmoins, l'excès de risque relatif de cancer ou de leucémie est selon Zablotska *et al.* (2004) plus élevé lorsque la dosimétrie prise en compte intègre la dosimétrie tritium que lorsque tel n'est pas le cas. De même, les décès par leucémie seraient plus nombreux chez les enfants de la ville canadienne de Pickering après la mise en service du réacteur du même nom (AECB, 1991a).

Les études expérimentales conduites sur l'animal sont mieux documentées. Elles ont mis en évidence une sur incidence et/ou la

¹ Les effets aléatoires sont caractérisés par le fait que leur probabilité augmente avec la dose reçue, mais non leur gravité, qu'ils apparaissent chez certains sujets irradiés mais non chez tous et que ce sont des effets sans seuil. Les effets déterministes apparaissent chez tous les sujets irradiés à partir d'un certain seuil et leur gravité augmente avec la dose reçue.

promotion, en général dose dépendantes, des leucémies et de tous les types de cancers après une contamination par le tritium (Myers et Johnson, 1990 ; Johnson *et al.*, 1995 ; Török *et al.*, 1979 ; Gragtmans *et al.*, 1984 ; Mewissen et Rust, 1973 ; Balonov *et al.*, 1993 ; Yamamoto *et al.*, 1995), ainsi que des effets sur la descendance de parents exposés au tritium avant la conception : mortalité embryonnaire et périnatale, réduction de la taille des portées, réduction pondérale, malformations congénitales, mortalité néonatale (Carsten *et al.*, 1977 ; Mewissen et Ugarte, 1979), Mewissen *et al.* (1987) suggérant pour leur part l'apparition de tumeurs.

2|2| Les effets cellulaires précoces et l'approche microdosimétrie

D'assez nombreuses études *in vivo* (e.g. Jha *et al.*, 2005) ou *in vitro* (e.g. Kamiguchi *et al.* 1990a,b) ont porté sur les effets cellulaires précoces (micronoyaux, cassures simple/double brin, mutations létales dominantes...) d'une contamination par l'eau tritiée, plus rarement par du tritium organiquement lié (e.g. Balonov *et al.* 1993). L'efficacité biologique du tritium apparaît extrêmement variable selon les composés et les effets étudiés (12 fois plus pour la thymidine tritiée que pour d'autres composés (Balonov *et al.* 1993), 2 à 10⁴ fois pour la thymidine tritiée selon les composés étudiés (Paquet et Métivier, 2008)).

L'approche microdosimétrique quant à elle permet d'affiner l'évaluation de la dose et de mieux connaître la nature des dommages sur les structures sensibles du noyau cellulaire, autorisant ainsi une évaluation plus réaliste du facteur de pondération w_R aujourd'hui considéré comme égal à 1 par la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) (ICRP, 2007a).

Ces études ne permettent naturellement pas d'extrapoler à des effets sanitaires.

2|3| L'évaluation de l'efficacité biologique relative

L'évaluation de l'efficacité biologique relative enfin permet d'estimer l'efficacité biologique du tritium par comparaison avec l'efficacité biologique d'autres types de rayonnements telle qu'elle a été établie chez les populations exposées aux bombardements d'Hiroshima et Nagasaki. En ce qui concerne l'administration d'eau tritiée à faible dose et faible débit de dose, une synthèse de nombreuses données conclut à un coefficient d'efficacité de 1,2 et 2,5 par rapport aux rayons X et gamma respectivement pour l'apparition d'effets aléatoires tardifs (tumeurs) (Little et Lambert, 2008). Ce coefficient serait de 1 à 2 pour les effets cellulaires précoces (survie cellulaire, micronoyaux, aberrations chromosomiques, conversion de gènes, mutations) (Dupont *et al.*, 1996).

Par delà les limites déjà soulignées, la démarche exposée précédemment soulève de nombreuses interrogations, certaines spécifiques au tritium, d'autres d'ordre général.

Ces interrogations portent sur quatre points : les formes du tritium étudiées, l'évaluation de la dose effective engagée, les effets sanitaires étudiés et l'évaluation de l'efficacité biologique relative.

3| Questions d'actualité

3|1| Les formes du tritium étudiées

Les études disponibles concernent en majorité la contamination par l'eau tritiée. Les composés métalliques et certains composés organiques sont par contre peu documentés. La forme liée aux molécules biologiques l'est insuffisamment, s'agissant notamment de son effet sur le fœtus.

Bien que témoignant d'une grande variabilité, les résultats disponibles font apparaître une toxicité de la forme liée OBT supérieure à celle de l'eau tritiée : dose engagée au foie deux fois plus élevée après ingestion de nourriture tritiée qu'après consommation d'eau tritiée (Takeda,

1991), mutations, effet sur la mortalité et la division cellulaires, atteintes cérébrales chez les rongeurs exposés avec une efficacité biologique relative des formes OBT/HTO = 3 (Balonov *et al.*, 1993 ; Wang *et al.*, 1999 ; Hamby et Palmer, 2001 ; Richardson *et al.*, 2003), efficacité sous-estimée d'un facteur 12 dans le cas de la nourriture « grain » (De Vol et Powel, 2004), toxicité augmentée d'un facteur 10 à 10⁴ chez les rongeurs quand le tritium est lié à certaines molécules biologiques (Lambert et Clifton, 1967, 1968 ; Streffer *et al.*, 1977 ; Rytömaa *et al.*, 1979 ; Yamada et Yuwaka, 1984, Müller *et al.*, 1986). En cas de contamination aiguë par du tritium lié, les risques à court terme seraient selon Lebaron-Jacobs et Flury-Hérard (2007) 2 à 3 fois plus élevés.

En ce qui concerne les études portant sur l'eau tritiée, il convient en outre de tenir compte de situations particulières où son temps de séjour dans l'organisme et par conséquent ses effets biologiques sont plus importants que ce qui est habituellement retenu. C'est ainsi le cas de l'accumulation de tritium sous forme d'eau tritiée dans l'espace extra cellulaire de l'ADN (Health Protection Agency, 2007).

3|2| L'évaluation de la dose efficace engagée

Cette question comporte plusieurs aspects, qui ne sont d'ailleurs pas sans lien avec le point précédent.

La dose engagée dépend tout d'abord des caractéristiques de l'exposition. Les études expérimentales disponibles portent en grande partie sur des expositions à de fortes doses de tritium. Pourtant, l'impact d'une exposition chronique pourrait être supérieur d'un facteur 2 à celui d'une exposition aiguë à la même dose de tritium, qu'il s'agisse d'eau tritiée ou de tritium organiquement lié (Lebaron-Jacobs et Flury-Hérard, 2007). Cette estimation est à mettre en perspective avec le facteur d'efficacité relative de 0,5 retenu à cet égard par la CIPR. Elle reviendrait donc à conclure à une sous-estimation d'un facteur 4 de l'efficacité d'une exposition à faible dose et faible débit de dose. En marge de ces évaluations, la question est posée de la forme de la courbe dose-effet aux faibles et très faibles doses. Concernant par exemple la survie de certaines lignées de cellules de rongeurs exposées à des doses croissantes de thymidine tritiée, Sainteny *et al.* (2008) font ainsi état d'un effet délétère proportionnellement beaucoup plus important aux très faibles doses (courbe biphasique). De telles observations ont au demeurant été réalisées par de nombreux chercheurs avec d'autres matrices et d'autres radioéléments ou d'autres types de rayonnements (e.g. Zaka *et al.*, 2002). En outre, l'effet n'est pas connu d'une exposition cumulée sur toute une vie, de surcroît de manière variable au cours du temps comme c'est le cas pour les travailleurs du nucléaire ou les populations vivant autour des sites nucléaires. Enfin, le contexte dans lequel la dose est délivrée mérite également d'être pris en considération (unités de concentration en tritium dans le milieu et discrimination isotopique par exemple).

Par ailleurs, l'évaluation de la dose efficace engagée repose sur des modèles biocinétiques qui postulent le principe d'une répartition homogène de la dose reçue et sur des données relatives aux effets d'une irradiation externe, alors que le tritium organiquement lié n'est pas uniformément réparti dans l'organisme et que la contamination est le seul mode d'exposition au tritium. Les études portant sur la distribution et le temps de séjour du tritium dans les organes et les tissus sont peu nombreux. Hisamatsu *et al.* (1992) font ainsi état de fortes concentrations de tritium dans les tissus osseux de la cage thoracique de sujets japonais comparées à celles que l'on trouve dans d'autres tissus, et d'une grande variabilité de sa période biologique (57 ans et moins de 6 ans pour les cartilages des côtes et le sternum respectivement). Divers auteurs considèrent aujourd'hui que le temps de séjour du tritium dans l'organisme doit être réévalué. Lebaron-Jacobs et Flury-Hérard (2007) distinguent ainsi : une période biologique de 10 jours pour plus de 92 % du tritium ; des périodes biologiques moyennes, variables en fonction de l'âge, de 0,75 à 22 jours en fonction des sous-compartiments pour moins de 3 % du tritium ; une période biologique moyenne d'environ 450 jours pour moins de 1 % du tritium. Néanmoins la question de la période biologique du tritium organiquement lié nécessite d'être approfondie en lien avec sa distribution et sa rémanence dans les organes et les tissus.

Enfin, ces modèles postulent un apport quotidien en tritium composé en majorité d'eau tritiée (ICRP, 1989). Or diverses études font apparaître un rapport OBT/HTO différent voire inverse dans l'alimentation (Bogen *et al.*, 1979, Clemente *et al.*, 1979). Au demeurant, cette question renvoie à celle de la bioaccumulation du tritium le long des chaînes trophiques.

3|3| Les effets sanitaires étudiés

Concernant les effets cliniques, et par-delà le manque de données épidémiologiques déjà souligné, il convient de s'interroger sur la définition des effets aléatoires retenue par la Commission Internationale de Protection Radiologique (ICRP, 2007b) : cancers et effets génétiques apparaissant sur les deux premières générations. Dans le prolongement de travaux tels que ceux de Preston *et al.* (2003) et Wong *et al.* (1993), ou encore de Hamilton *et al.* (1987) et Ron *et al.* (1989), il conviendrait de l'élargir aux effets autres que les cancers et les effets héréditaires. Quant aux effets héréditaires radioinduits, la question se pose de la pertinence de leur limitation aux deux premières générations (UNSCEAR, 2001 ; Smeesters, 2006).

De même, la question des effets déterministes après exposition au tritium est chez l'homme peu documentée et porte essentiellement sur des travailleurs exposés à de très fortes doses (perturbations ou destruction cellulaires) (Milacic, 2004 ; Seelentag, 1973). Les études relatives aux effets sur le fœtus qui ont été réalisées dans l'environnement du réacteur de Pickering déjà cité font apparaître des corrélations significatives entre mortalité néonatale d'une part, anomalies du système nerveux d'autre part et rejets en tritium, ainsi qu'une augmentation significative du syndrome de Down (AECB, 1989, 1991b). Ces études souffrent néanmoins de divers biais méthodologiques.

Les effets du tritium sur l'animal sont mieux documentés. Plusieurs études ont ainsi mis en évidence l'affinité du tritium pour les gamètes et/ou ses effets à faible dose sur la fertilité (Pietrzak-Flis *et al.* 1982 ; Dobson et Kwan, 1977 ; Dobson, 1979 ; Török *et al.*, 1979), son affinité et sa toxicité pour le cerveau notamment à faible dose (Wang *et al.*, 1999 ; Bhatia, 2005 ; Zamenhof et van Martens, 1979 ; Török *et al.*, 1979 ; Hamby et Palmer, 2001 ; Richardson et Dunford, 2003), sa toxicité pour les systèmes vasculaire, cardiovasculaire, respiratoire ainsi que pour le squelette (Zamenhof et van Martens, 1979 ; Satow *et al.* 1987 ; Lee *et al.* 1988). Le caractère dose dépendant des effets est établi dans certaines de ces études.

Plus généralement, les effets cellulaires non ciblés (effet de voisinage, instabilité génomique transmissible) doivent être étudiés. Geraschenko et Howell (2004, 2005) ont ainsi montré une prolifération de cellules situées à proximité de cellules marquées par le tritium. Persaud *et al.* (2007) signalent quant à eux des mutations au voisinage de cellules ayant reçu de faibles doses de particules bêta de faible énergie. La survenue d'altérations biologiques diverses (remaniements chromosomiques, mutations, réduction de la survie cellulaire, ...) après plusieurs divisions successives de la cellule irradiée, ou instabilité génomique transmissible, a quant à elle été montrée chez l'animal après exposition à de faibles doses de rayonnement (Dubrova *et al.*, 2000 ; Little, 2002). Bien qu'encore peu exploré, ce phénomène est proposé par certains auteurs pour expliquer les effets observés d'une exposition à de faibles doses de tritium. L'existence et les conditions d'apparition d'une éventuelle réponse adaptative mérite également d'être étudiée, à la suite notamment des travaux de Olivieri *et al.* (1992).

Enfin, il convient de s'assurer du caractère limité de l'effet chimique de phénomènes tels que la transmutation du tritium en hélium dans la molécule organique (Krasin *et al.*, 1976 ; Carsten 1979 ; Feinendegen et Bond, 1971) ou l'énergie de recul produite par la désintégration de celui-ci (NRCP, 1979).

3|4| L'évaluation de l'effet : l'efficacité biologique relative

Si la cytotoxicité des rayonnements est plus importante à de faibles énergies qu'à des énergies plus importantes (Ujeno, 1983 ; Frankenberg *et al.*, 2002 ...), cela peut être encore plus vrai à faible dose et faible débit de dose (Dobson, 1979 ; Dobson et Kwan, 1977 ; Ujeno, 1983 ; Sainteny *et al.*, 2008). Trabalka et Kocher (2007) font des constatations analogues concernant l'induction de cancers. Or cette variable n'est pas prise en compte dans l'évaluation de l'efficacité biologique relative (EBR) du tritium. De plus, les énergies des rayonnements gamma utilisés pour déterminer cette EBR sont plus faibles que celles des rayonnements gamma qui ont été délivrés aux populations japonaises lors des bombardements d'Hiroshima et Nagasaki (Young et Kerr, 1995). Ces observations conduisent à s'interroger sur une éventuelle sous-estimation de l'efficacité relative du tritium.

4| Conclusion

S'agissant de contamination interne, la radioprotection individuelle repose notamment sur trois notions essentielles : la limite de dose efficace engagée, l'estimation du risque par unité de dose engagée et les coefficients de dose par unité d'incorporation (DPUI), ces derniers s'adossant sur diverses notions telles le facteur de pondération radiologique w_R ou le coefficient de sensibilité relative des tissus et organes w_T . En ce qui concerne le tritium, les DPUI sont parmi les moins élevées et présentent des amplitudes importantes (jusqu'à cinq ordres de grandeur).

Néanmoins, l'étayage de ces DPUI pose problème à plusieurs niveaux. Tout d'abord, elles ne reposent pas sur des données épidémiologiques humaines. Ensuite, toutes les formes du tritium n'ont pas été étudiées (formes métalliques, certains composés organiques) ou l'ont été insuffisamment (formes liées aux molécules biologiques, voire eau tritiée), qu'il s'agisse d'expérimentation animale ou d'études cellulaires. Par-delà cette remarque, les modèles utilisés pour l'évaluation de la dose engagée sont sujets à débat, et ce à plusieurs titres : caractéristiques de l'exposition prises en compte, principe de l'irradiation externe et son corollaire le postulat d'une exposition uniforme de l'organisme, apport quotidien en différentes formes de tritium. Alors même que l'exposition au tritium se produit par contamination, en général à faible dose et faible débit de dose, que les rares études disponibles font état de concentrations différentielles du tritium dans les organes et tissus et qu'elles soulignent le caractère relatif des estimations de l'apport quotidien des différentes formes de tritium. Par ailleurs, le spectre des effets étudiés est limité. Enfin, l'évaluation de la toxicité du tritium au moyen de l'évaluation de son efficacité relative conduirait aujourd'hui à une sous-estimation de cette toxicité.

Même si les études réalisées avec des faibles doses sont insuffisantes, les résultats disponibles vont dans le sens d'une toxicité du tritium plus importante que la toxicité retenue par les instances de radioprotection. Toutes les formes de tritium ne sont cependant pas également concernées. Si la forme gaz semble peu agressive, l'eau libre tritiée semble l'être davantage que la forme gaz, et les formes liées, présentes dans tous les organismes vivants (et donc également dans l'alimentation), encore davantage. Certaines données conduisent à supposer que l'effet d'une exposition chronique à de l'eau tritiée serait sous-estimée d'un facteur 4,



et que l'effet d'une exposition chronique à du tritium organiquement lié serait supérieur d'un facteur 4 à 6 à celui d'une exposition aiguë à de l'eau tritiée. Néanmoins, les données disponibles sont très insuffisantes, et l'évaluation des incertitudes quant à l'estimation des DPUI controversée (CERRIE, 2004).

Des organismes tels que le CERI (2003), le CERRIE (2004) ou AGIR (HPA, 2007) nuancent fortement pour leur part les recommandations de la CIPR, et préconisent la mise en oeuvre d'études épidémiologiques, ainsi que le développement de la recherche selon trois axes (effets sanitaires, biocinétique et efficacité biologique relative) pour les différentes formes de tritium. Enfin, dans une perspective de prévention et quelle que soit la perspective adoptée aujourd'hui en radioprotection, il conviendrait de définir, à titre indicatif, des limites dérivées de contamination des aliments et des milieux. Mais une telle démarche supposerait qu'une réponse a été apportée aux interrogations relatives à la biocinétique du tritium chez l'homme et dans l'environnement.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

AECB (1989). Childhood Leukemia around Canadian Nuclear Facilities -Phase 1. A Report prepared by the Ontario Cancer Treatment and Research Foundation. Ottawa, Canada.

AECB (1991a). Childhood Leukemia around Canadian Nuclear Facilities - Phase II-Final Report. A Report prepared by the Ontario Cancer Treatment and Research Foundation. AECB-INFO-0300-2. Ottawa, Canada.

AECB (1991b). Tritium Releases from the Pickering Nuclear Generating Station and Birth Defects and Infant Mortality in Nearby Communities 1971-1988, Atomic Energy Control Board, Report INFO-0401. Ottawa, Canada.

Balunov MI, Muskinova KN, Mushkacheva GS (1993). Tritium radiobiological effects in mammals : Review of experiments of the last decade in Russia. *Health Phys*, 65 : 713-726.

Bhatia AL (2005). Radiation risk: technological perspective and public perception of tritium toxicity in the environment. Proceedings of the 9th International Conference on Environmental Science and Technology. Rhodes Island, Greece, 1-3 september 2005.

Bogen DC, Welford GA, White CG (1979). Tritium distribution in man and his environment. (IAEA – SM 232/75), AEIA. OCDE, AEN, Behaviour of tritium in the environment, San Francisco, 16-20 octobre 1978, Vienne, AIEA.

Carsten AL (1979). Tritium in the environment : isotopic effects and transmutation. In *Advances in Radiation Biology*, 8, 419-458 (Lett JT, Adler H, eds). New York, Academic Press.

Carsten AL, Commerford SL, Cronkite EP (1977). The genetic and late somatic effects of chronic tritium ingestion in mice. *Curr Top Radiat Res*, 12 : 212-224.

CERI (2003). Etudes des effets sanitaires de l'exposition aux faibles doses de radiations ionisantes à des fins de radioprotection. Recommandations 2003 du Comité Européen sur le Risque de l'Irradiation. Edition Frison Roche.

CERRIE Report. (2004). Report of the Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters. National, Radiological Protection Board, Chilton, 148 p. <http://www.cerrie.org>.

Clemente GF, Belloni P, DiPietro S, Santori G, Santorani GP (1979). Tritium and plutonium content in the Italian diet and transfer to man. In IAEA. Biological Implications of Radionuclides from Nuclear Industries. Vol II : 257-264.

De Vol TA, Powell BA (2004). Theoretical organically bound tritium dose estimates. *Health Phys*, 86 : 183-186

Dobson RL (1979). The toxicity of tritium. Proceedings of the Symposium Behaviour of Tritium in the Environment. San Francisco, 16-20 octobre 1978, Vienne, AIEA, 1979, pp. 203-213.

Dobson RL, Kwan TC (1977). The tritium RBE at low level exposure – Variation with dose, dose rate and exposure duration. *Curr. Top. Radiat. Res. Quat.* 12 : 44-62.

Dubrova YE, Plumb M, Brown J, Boulton E, Goodhead D, Jeffreys AJ (2000). Induction of minisatellite mutations in the mouse germline by low-dose chronic exposure to gamma-radiation and fission neutrons. *Mut Res.* 453 : 17-24.

Duport P, Flûry-Hérard A, Rabin E (1996). Effets biologiques et risques liés au tritium. In Belot Y, Roy M, Métivier H (Dir.) Le tritium, de l'environnement à l'homme. *Les Editions de Physique*, 1996, 190 p.

Feinendegen LE, Bond VP (1971). Transmutation versus beta irradiation in the pathological effects of tritium decay. In Tritium (Moghissi A.A, Carter M.W., eds). Nevada, *Messenger Graphics*, 221-231.

Frankenberg D, Frankenberg-Schwager M, Garg I, Pralle E, Uthe D, Geve B, Severin E, Göhde W (2002). Mutation induction and neoplastic transformation in human and human hamster-hybrid cells: dependence on photon energy and its modulation in the low dose range. *J Radiol Prot*, A17-A20.

Geraschchenko BI, Howell RW (2004). Proliferative response of bystander cells adjacent to cells with incorporated radioactivity. *Cytometry*, 60A : 155-164.

Geraschchenko BI, Howell RW (2005). Bystander cell proliferation is modulated by the number of adjacent cells that were exposed to ionizing radiation. *Cytometry*, 66A : 62-70.

Gragtmans NJ, Myers DK, Johnson JR, Jones AR, Johnson LD (1984) Occurrence of Mammary Tumors in Rats after Exposure to Tritium Beta Rays and 200-kVp X rays. *Rad Res*, 99 : 636-650.

Hamby DM, Palmer TS (2001). Analysis of an internal kinetic model for free and bound tritium. *Health Phys*, 81 : 426-437.

Hamilton TH, van Belle G, LoGeerfo JP (1987) Thyroid Neoplasia in Marshall Islanders Exposed to Nuclear Fallout. *Jama*. 258 : 629-636.

Health Protection Agency (2007). Review of Risks from Tritium. Report of the independent Advisory Group on Ionising Radiation. Documents of the Health Protection Agency, Radiation, *Chemical and Environment Hazards*, November 2007, 90 p.

Hisamatsu S, Ohimura T, Takizawa Y, Katsumata T, Inoue Y, Itoh M, Ueno K, Sakanoue M (1992). Tritium level in Japanese diet and human tissue. *J Radioanal Nucl Chem*, 156 : 89-102.

ICRP (1989). Age-dependant Doses to members of the public from intakes of radionuclides. Publication 56. Part 1. Pergamon Press, Oxford.

ICRP (2007a). Draft Guidance Document. Bioassay Data Interpretation. www.icrp.org/news_guidance.asp. Cité par Health Protection Agency (2007). Review of Risks from Tritium. Report of the independent Advisory Group on Ionising Radiation. Documents of the Health protection Agency. Radiation, Chemical and Environmental Hazards.

ICRP (2007b). Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Publication 103. Elsevier Science Ltd. Oxford.

Jha AN, Dogra Y, Turner A, Millward GE (2005). Impact of low doses of tritium on the marine mussel, *Mytilus edulis*: Genotoxic effects and tissue-specific bioconcentration. *Mut. Res.*, 586 : 47-57.

Johnson JR, Myers DK, Jackson JS, Dunford DW, Gragtmans NJ, Wyatt HM, Jones AR, Recy DH (1995). Relative Biological Effectiveness of tritium for Induction of Myeloid Leukemia in CBA/H Mice. *Rad Res*, 144 : 82-89.

Kamiguchi Y, Tateno H, Mikamo K (1990a). Dose-response relationship for the induction of structural chromosome aberration in human spermatozoa after in vitro exposure to tritium β -rays. *Mut Res*, 228 : 125-131.

Kamiguchi Y, Tateno H, Mikamo K (1990b). Types of structural chromosome aberrations and their incidences in human spermatozoa X-irradiated in vitro. *Mut Res*, 228 : 133-140.

Krasin F, Person S, Ley RD, Hutchinson F (1976). Local effect for (^3H) cytosine decays. *J Mol Biol*, 105 : 445

Lambert BE, Clifton RJ (1968). Radiation doses resulting from the ingestion of tritiated thymidine by the rat. *Health Phys*, 15 : 3-9.

- Lebaron-Jacobs L, Flüry-Herard A (2007).** Les effets sur la santé du tritium. Point des connaissances sur le Tritium organiquement lié (OBT). CSSIN du 31 mai 2007, 4 p.
- Lee JY, Satow Y, Sawada S (1988).** The teratogenic effects of tritiated water and the tritium simulator on rat embryos. *J. Radiat Res*, 29 : 61.
- Little JB (2002).** Radiatio-induced genomic instability and bystander effets : implications for radiation protection. *Radioprotection*, 37 : 251-282.
- Little MP, Lambert BE (2008).** Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium. *Radiat Environ Biophys*, 47, 71-93.
- Mewissen DJ (1987).** Stochastic effects of multigeneration exposure of male mouse germinal cell line to low level tritium. *Intern J Radiat Biol*, April 1987.
- Mewissen DJ, Furedi M, Ugarte A, Rust JH (1977).** Comparative incorporation of tritium from tritiated water versus tritiated thymidine, uridine or leucine. *Curr Top Radiat Res*, 12 : 225-254.
- Mewissen DJ, Ugarte AS (1979).** Cumulative genetic effects from exposure of male mice to tritium for ten generations. Biological Implications of radionuclides released from nuclear industries. Proceedings of the Symposium Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries. Vol I. IAEA. Vienna. 26-30 march 1979, pp. 215-230.
- Milacic S (2004).** Changes in leukocytes caused by tritium contamination. *Health Phys*, 86, 457-459.
- Müller WU, Streffer C, Molls M, Glück L (1986)** Radiotoxicity of ³H-thymidine and ³H-arginine in pr-implantation mouse embryos in vitro. *Radiat Prot Dos*, 16 : 155-158.
- Myers DK, Johnson JR (1990).** RBE for Induction of Myeloid Leukemia in CBA/H Mice. Ottawa, Canada : Atomic Energy Control Board. Info-0360.
- NCRP (1979).** National Council on Radiation Protection and Measurements, «Tritium in the Environment», NCRP Report No. 62, Bethesda, MD, 1979.
- Olivieri G, Bodycote J, Wolff S (1992).** Adaptative response of human lymphocytes to low concentrations of radioactive thymidine. *Science*, 594-597, cité par Duport P., Flüry-Hérard A., Rabin E. (1996). Effets biologiques et risques liés au tritium. In : Belot Y., Roy M., Métivier H. (Dir.) Le tritium, de l'environnement à l'homme. Les Editions de Physique, 1996, 190 p.
- Paquet F, Métivier H (2008).** Les Risques lies aux expositions au tritium sont-ils sous-évalués ?. *Radioprotection*, 43 : 193-201.
- Persaud R, Zhou H, Hei TK, Hall EJ (2007).** Demonstration of a radiation-induced bystander effect for low dose low LET β -particles. *Radiat. Environ. Biophys.*, 46 : 395-400.
- Pietrzak-Flis Z, Radwan I, Major Z, Kowalska M (1982).** Tritium Incorporation in rats chronically exposed to tritiated food or tritiated water for three successive generations. *J Radiat Res*, 22 : 434-442.
- Preston DL, Shimizu Y, Pierce DA, Suyama A, Mabuchi K (2003).** Studies of Mortality of Atomic Bomb Survivors. Report 13: Solid Cancer and Noncancer Disease Mortality: 1950-1997. *Rad Res*, 160 : 381-407.
- Richardson RB, Dunford DW (2003).** A biochemical based model for the dosimetry of dietary organically bound tritium-part 2: Dosimetric evaluation. *Health Phys*, 85 : 539-52.
- Ron E, Modan B, Preston D, Alfandary E, Stovall M, Boice JD (1989).** Thyroid Neoplasia following Low-Dose Radiation in Childhood. *Rad Res*, 120 : 516-531.
- Rytömaa T, Salveto J, Toivonen H (1979).** Radiotoxicity of tritium-labelled molecules. Proceedings of the Symposium Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries. Vol I. IAEA. Vienna. 26-30 march 1979, pp. 239-250.
- Sainteny Y, Roche S, Meynard D, Lpez BS (2008)** Homologous recombination is involved in the Repair response oh Mammalian Cells to Low Doses of Tritium. *Rad Res*. 170 (2) : 172-183.
- Satow Y, Lee JY, Sawada S, Nakamura N (1987).** Teratogenicity of tritium on rats embryos. *Cong.Anom*, 27 : 23-29.
- Seelentag W (1973).** Two cases of tritium fatality. In (Moghissi A.A., Carter M.W., Eds) Tritium. *Messenger Graphics*, 267-280.
- Smeesters P (2006).** New data on radiation-induced genetic risk and prenatal exposures : ethical aspects and regulatory implications. Proceedings of the International Scientific Seminar Ionizing radiation, genetic and embryonic risk: Chernobyl data and new insight organized. FANC-AFC with SCK.CEN. Brussels 21 April 2006. 8 pages.
- Streffer C, Van Beuningen D, Elias S (1977).** Comparative effects of tritiated water and thymidine on the preimplanted mouse embryos in vitro. *Curr Top Radiat Res Quat*, 12 : 182-193.
- Takeda H (1991).** Incorporation and distribution of tritium in rats after chronic exposure to various tritiated compounds. *Int J Radiat Biol*, 59 : 843-853.
- Török P, Schmahl W, Meyer I, Kistner G (1979).** Effects of a single injection of tritiated water during organogeny on the prenatal and postnatal development of mice. Proceedings of the Symposium Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries. Vol I. IAEA. Vienna. 26-30 march 1979, pp. 241-254.
- Trabalka JR, Kocher DC (2007).** Energy dependence of dose and dose-rate effectiveness factor for low-let radiations: potential importance to estimation of cancer risks and relationship to biological effectiveness. *Health Phys.*, 93 : 17-27.
- Ujeno Y (1983).** Relative biological effectiveness (RBE) of tritium beta rays in relation to dose rate. *Health Phys*, 45 : 789-
- UNSCEAR, Comite Scientifique des Nations Unies sur les Effets des Rayonnements Ionisants (1991).** Heritable Effects of Ionizing Radiation, New York, 2001.
- Wang B, Takeda H, Gao WM, Zhou XY, Odaka T, Ohyama H, Yamada T, Hayata I (1999).** Induction of apoptosis by beta irradiation from tritium compounds in mouse embryonic brain cells. *Health Phys*, 77 : 16-23.
- Wong FL, Yamada M, Sasaki H, Kodama K, Akiba S, Shi-maoka K, Hosoda Y (1993).** Noncancer disease incidence in the atomic bomb survivors 1958-1986. RERF TR 1-92. *Rad Res*, 135 : 418-430.
- Yamada T, Yuwaka O (1984).** Changes in sensitivity of mouse embryos during the pronuclear and the 2-cell- stage. Eulep Symposium, CCE, Luxembourg.
- Yamamoto O, Seyama T, Jo T, Terato H, Saito T, Kinomura A (1995).** Oral administration of tritiated water (HTO) in mouse, II. Tumour development. *Int J Radiat Biol*, 68 : 47-54.
- Young R, Kerr G (1995).** Reassessment of the atomic radiation dosimetry for Hiroshima and Nagasaki : Report of the joint US-Japan working group, Radiation Effects Research Foundation. Hiroshima.
- Zablobska L. B., Ashmore J.P., Howe G. R. (2004).** Analysis of mortality among Canadian nuclear power industry workers after chronic low-dose exposure to ionizing radiation. *Radiat Res*, 161 : 633-641.
- Zaka R, Chenal C, Misset MT. (2002).** Study of external low irradiation dose effects on induction of chromosome aberrations in Pisum sativum root tip meristem. *Mut Res.*, 517 : 87-99.
- Zamenhof S, van Marthens E (1979).** The effects of chronic ingestion of tritiated water on prenatal brain development. *Radiat Res*, 77 : 117-127.

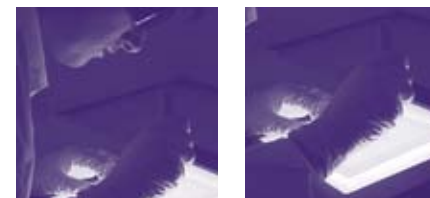
Éléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium

A. Rannou et P. Gourmelon
Direction de la Radioprotection de l'Homme - IRSN
Rapport DRPH/DIR/2009-18

1 | Introduction

Le tritium a toujours suscité un grand intérêt parmi les scientifiques et a fait l'objet de très nombreuses publications au cours des 30 dernières années, tant sur ses aspects environnementaux que sanitaires. L'IRSN a publié en 1996 un ouvrage de synthèse sur « le tritium de l'environnement à l'homme » [1]. Ce radionucléide suscite depuis 2007 un regain d'intérêt de la part des scientifiques mais aussi un questionnement du public quant à sa dangerosité pour l'homme dans les conditions d'expositions environnementales. Ce nouveau contexte s'explique par les perspectives d'augmentation des rejets de tritium dans l'environnement par les centrales en fonctionnement, mais aussi par les installations futures telles que l'EPR à Flamanville et ITER à Cadarache. Plusieurs événements scientifiques et sociétaux illustrent ces nouvelles interrogations. On retiendra notamment la parution du rapport du groupe AGIR du HPA (Health Protection Agency) [2], le séminaire scientifique organisé au Luxembourg par la Commission européenne en novembre 2007 [3], le workshop organisé par la Commission Canadienne de Sécurité Nucléaire en janvier 2008 [4] et celui organisé à Orsay par l'Association Nationale des Commissions Locales d'Informations (ANCCLI) en novembre 2008 [5], enfin le groupe de travail mis en place par l'ASN en 2008. Le rapport du groupe de travail AGIR constitue la revue la plus récente de la littérature scientifique sur le sujet, il s'appuie sur 225 références bibliographiques et offre une très bonne synthèse des connaissances actuelles et des incertitudes sur la dosimétrie du tritium, son efficacité biologique relative, les études épidémiologiques, et les effets sur la reproduction chez la femme.

Le présent rapport analyse la problématique sanitaire posée par le tritium et apprécie la robustesse du système de radioprotection vis-à-vis de ce radionucléide, en mettant en lumière les déficits de connaissances scientifiques sur ses effets biologiques et les recherches à promouvoir en la matière. L'examen des différents sujets évoqués ci-dessus soulève un certain nombre de questions importantes pour les fondements de la radioprotection qui pourraient avoir des implications pratiques. L'ensemble de la communauté scientifique admet aujourd'hui que les estimations de risques consécutifs aux contaminations internes par les radionucléides sont entachées d'incertitudes et que le concept de dose est difficile à utiliser comme indicateur de risque dans ce domaine. Ainsi, le président du comité CERRIE¹ [6] concluait que, pour l'ensemble des radionucléides, « les incertitudes liées à l'évaluation des risques après contamination



interne peuvent être importantes et cela doit être pris en compte dans les décisions politiques et réglementaires » [7]. La question de fond est donc de savoir si, dans le cas du tritium, le système de radioprotection pour les expositions environnementales est aujourd'hui suffisamment robuste et s'il assure une protection des populations exposées avec une marge de sécurité suffisante.

Après avoir rappelé quelle est l'approche générale qui peut être suivie pour évaluer le risque radiologique lié au tritium dans les conditions d'expositions environnementales, quatre questions principales sont examinées successivement dans la suite de ce rapport :

- que nous apportent les études épidémiologiques sur le risque tritium chez l'homme ?
- que sait-on des effets biologiques du tritium organique (OBT) ?
- quelle est l'efficacité biologique relative (EBR) du tritium ?
- faut-il revoir le facteur de pondération pour le rayonnement dans le cas du tritium ?

2 | Approche générale de l'évaluation du risque radiologique

D'une manière générale, le risque pour la santé consécutif à une exposition de l'homme aux rayonnements ionisants dans une situation donnée peut être évalué selon deux approches : l'approche épidémiologique et l'approche dosimétrique.

2.1 | Approche épidémiologique

Les études épidémiologiques offrent la possibilité d'observer les effets sur la santé dus à une exposition à un agent toxique ou carcinogène et, dans des conditions données, de quantifier ces effets via une relation dose-réponse. L'existence d'associations entre l'exposition et la maladie, corroborées par plusieurs études épidémiologiques et confortées par des études expérimentales chez l'animal permettent d'établir l'effet produit par cet agent sur la santé de l'homme.

La partie 3 présente les connaissances que nous apporte l'approche épidémiologique dans le cas particulier du tritium.

¹ Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters

2|2| Approche dosimétrique

Le détriment, pour la santé de l'homme, résultant d'une exposition à une source donnée de rayonnements ionisants - du tritium dans le cas présent - peut être quantifié à partir de la relation dose-réponse fondée sur les résultats d'études épidémiologiques portant sur des populations chez qui les effets sont aujourd'hui bien établis (survivants d'Hiroshima et Nagasaki en particulier) et de la connaissance de la dose reçue. L'hypothèse centrale d'une relation dose-effet linéaire sans seuil pour l'induction d'un cancer ou d'effets héréditaires, selon laquelle un incrément de dose produit un incrément proportionnel du risque, même aux faibles doses, sert toujours de base pour la sommation des doses provenant de sources externes de rayonnement et de l'incorporation de radionucléides.

S'agissant de l'exposition de l'homme qui résulte de l'incorporation d'un élément radioactif, la dose reçue est évaluée selon une approche comportant différentes étapes : la modélisation biocinétique du comportement de cet élément dans l'organisme (c'est-à-dire la façon dont il se distribue dans les différents tissus et organes et est éliminé de l'organisme), le calcul de la dose de rayonnement absorbée dans les tissus de rétention, la pondération de cette dose absorbée par un coefficient prenant en compte les propriétés physiques et biologiques du radionucléide - que l'on appelle w_R (cf. § 6), enfin la pondération par un coefficient prenant en compte la probabilité et la gravité des effets induits dans ces tissus.

Les parties 4 et 5 présentent respectivement l'état des connaissances sur le comportement du tritium dans l'organisme et sur son efficacité biologique relative. La partie 6 présente une discussion sur le facteur de pondération pour le rayonnement applicable dans le cas du tritium.

3| Que nous apportent les études épidémiologiques sur le risque tritium chez l'homme ?

3|1| Etat de la question

Trois types de populations ont fait l'objet d'études épidémiologiques sur les effets du tritium :

- les travailleurs du nucléaire (exposition professionnelle à l'âge adulte),
- la population voisine de sites nucléaires (exposition environnementale due aux rejets de l'installation),
- les enfants de travailleurs du nucléaire (exposition in utero avec l'hypothèse d'un effet héréditaire associé à la dose reçue par les parents avant conception).

3|1|1| Etude des travailleurs du nucléaire

Des travailleurs des installations du cycle nucléaire et de fabrication des armes peuvent être exposés au tritium, de même que les personnels des usines de fabrication de molécules marquées utilisées en recherche, en médecine ou dans l'industrie.

Une publication de Milacic en 2004 [8] a montré que des aberrations chromosomiques dans les lymphocytes ont été observées chez 49% des personnes d'une cohorte de 54 travailleurs exposés dans l'industrie des colorants fluorescents et que les activités enzymatiques des granulocytes étaient significativement diminuées chez ces travailleurs exposés.

Dans la plupart des pays, un suivi radiotoxicologique (analyses urinaires) a été régulièrement assuré chez les travailleurs exposés au tritium. En revanche, l'évaluation des doses associées n'a jamais été systématique. Aussi, alors que des études épidémiologiques internationales ont fourni des résultats solides pour ce qui concerne le risque associé à l'exposition externe des travailleurs (e.g. étude du Centre Internationale de Recherche sur le Cancer, [9]), l'étude de cohortes soumises à un risque

de contamination interne se heurte à la plus grande difficulté de connaître l'exposition des individus dans ce type de situation. En dehors du radon, peu d'études sont aujourd'hui concluantes. C'est ce qui a motivé le lancement de projets tels que le projet européen alpha-risk² coordonné par l'IRSN.

A ce jour, des doses de tritium ont été estimées pour plusieurs entreprises :

- Sellafield - UK ([10], [11])
- Atomic Weapons Establishment AWE - UK ([12], [13])
- Savannah River Site SRS - USA ([14], [15], [16])
- Canadian nuclear workers - Canada ([17])

Les cohortes ci-dessus apparaissent comme les plus informatives pour le risque tritium, car comprenant de nombreux travailleurs. Néanmoins, les doses considérées dans ces études prenaient en compte le tritium mais aussi les autres types d'exposition (gamma, neutrons, contamination interne). Aucune de ces études n'a permis de considérer séparément la dose due au tritium et donc d'évaluer le risque spécifique lié au tritium. D'autres études (travailleurs de l'United Kingdom Atomic Energy Authority, UKAEA) ont utilisé des indicateurs de surveillance pour l'exposition au tritium, mais ne permettaient pas de prendre en compte l'exposition réelle des individus au tritium.

Au total, plusieurs études épidémiologiques impliquant des travailleurs du nucléaire ont été menées, et n'ont pas démontré de risque spécifique associé au tritium. Néanmoins, la plupart de ces études étaient peu informatives, par manque de puissance statistique et/ou par manque d'informations sur la dose tritium.

Le groupe AGIR [2] a dressé un bilan des expositions professionnelles au tritium en Grande Bretagne et discuté l'opportunité d'une étude épidémiologique nationale du risque tritium.

Selon leur bilan, au total, plus de 12 000 travailleurs, issus de 7 entreprises différentes, auraient eu une exposition au tritium. Une évaluation de la faisabilité d'une reconstitution des doses individuelles et d'un suivi sanitaire (mortalité et incidence) a été conduite pour chacune de ces entreprises. Pour certaines, les données permettant le suivi et l'estimation des doses individuelles sont déjà disponibles, pour d'autres un travail de collecte de données important doit être effectué. Le rapport AGIR souligne qu'un traitement cohérent (notamment fondé sur les modèles dosimétriques les plus récents) de tous les résultats des analyses radiotoxicologiques pour l'ensemble des travailleurs exposés au tritium serait souhaitable dans une perspective de leur utilisation dans des études épidémiologiques.

La continuation du travail de reconstitution des doses individuelles et la mise en place d'une cohorte nationale est l'une des recommandations majeures du rapport AGIR. Il souligne de plus qu'une étude internationale pourrait également être envisagée : Canada, USA, Angleterre et autres pays (éventuellement la France). Il est à noter qu'à ce jour un tel travail n'a pas été initié en France.

3|1|2| Etude de la population voisine des sites nucléaires

Le tritium est l'un des radionucléides prépondérants en terme d'activité rejetée dans l'environnement par les installations nucléaires. Le public est susceptible d'être exposé par l'incorporation du tritium présent dans l'eau et la chaîne alimentaire (ingestion) et dans l'atmosphère (inhalation + passage cutané).

Les doses pour le public calculées selon les hypothèses standards sont faibles : le groupe AGIR estime des doses efficaces³ de l'ordre de 20 μ Sv/an pour les membres du public les plus exposés consommant des produits marins de la baie de Cardiff. En France, les doses efficaces dues aux rejets



² <http://www.alpha-risk.org/>

³ La dose efficace est la somme pondérée des doses de rayonnement absorbées dans les différents tissus et organes du corps, la pondération tenant compte d'une part de la dangerosité relative du rayonnement considéré, d'autre part de la radiosensibilité propre de chaque tissu et organe. L'unité de dose efficace est le sievert (Sv)

de tritium correspondant aux limites demandées par les exploitants sont en moyenne de l'ordre du $\mu\text{Sv/an}$. Les valeurs les plus élevées sont celles des installations du site de Marcoule pour les effluents gazeux ($62 \mu\text{Sv/an}$) et de la centrale de Civaux pour les effluents liquides ($4 \mu\text{Sv/an}$). Le tritium représente en moyenne 7% de la dose efficace, toutes voies d'exposition confondues, due à l'ensemble des radionucléides présents dans les effluents gazeux des installations et en moyenne 10% de la dose efficace due à l'ensemble des radionucléides présents dans les effluents liquides.

Grosche *et al.* [18] ont étudié les taux de leucémies chez l'enfant à proximité des sites de Krümmel en Allemagne et de Savannah River Site (SRS) aux États-Unis : les rejets de tritium autour de SRS sont plus élevés qu'autour de Krümmel mais moins de cas sont observés. Les auteurs de cette étude concluent que leurs résultats n'indiquent pas de lien tritium – risque de leucémie.

D'autres études ont porté sur le voisinage de sites ayant a priori des rejets de tritium importants : incidence des leucémies chez les enfants autour des sites canadiens ([19], [20]), déficit de naissance et mortalité infantile autour du site de Pickering en Ontario [21], mortalité autour du site d'essais nucléaires de Salmon, Mississippi, USA [22]. Ces études sont de nature descriptive (c'est-à-dire n'ayant pas méthodologiquement la capacité à identifier les causes d'un éventuel excès de risque) et ne comportaient pas d'estimation individuelle des doses tritium. Elles ne permettent donc pas d'inférence sur le risque tritium seul.

Au total, les résultats actuellement disponibles ne montrent pas de risque associé au tritium au sein de la population voisine de sites nucléaires, mais il est important de souligner le faible nombre et la faible qualité des études effectuées.

3|1|3| Etudes sur les descendants des travailleurs du nucléaire

Green *et al.* [23] ont étudié les anomalies congénitales chez les descendants des travailleurs des centrales nucléaires Canadiennes (étude cas-témoin⁴). Les doses tritium ont été évaluées chez les pères et mères ayant eu une dose tritium dans les 60 jours avant la conception vs ceux qui n'en ont pas eu. Aucun lien entre exposition au tritium et anomalies congénitales chez les enfants n'a été observé (Odds ratio⁵, OR = 0,99 [0,67-1,47]).

Mc Laughlin *et al.* ont étudié les leucémies infantiles chez les descendants des travailleurs exposés de l'Ontario ([24], [25]). Dans cette étude cas-témoin, les doses ont été déterminées à partir du fichier de dosimétrie des travailleurs du Canada. Il n'a pas été mis en évidence d'association entre leucémie et exposition tritium.

Au total, il apparait que très peu d'études ont permis d'étudier les risques chez les descendants des travailleurs exposés au tritium. Les résultats disponibles ne montrent pas de risque associé.

3|2| Discussion

L'analyse effectuée par l'IRSN recoupe la revue des études épidémiologiques disponibles effectuée dans le rapport AGIR. Les études publiées ne fournissent pas de connaissance directe sur les risques associés au tritium. Les doses estimées sont en général faibles et les risques attendus également, donc difficiles à mettre en évidence. Les limites principales sont la puissance statistique (effectif) et la qualité des données dosimétriques. **Ces limites font qu'en l'état actuel, les résultats épidémiologiques disponibles ne permettent ni de démontrer l'existence de risques éventuels liés au tritium, ni de conclure que ces risques sont faibles ou négligeables.**

Le groupe AGIR recommande que soient considérées la pertinence et la possibilité de lancer au niveau international une étude épidémiologique des populations exposées au tritium. En France, la faisabilité de participer à une telle étude dépend de la disponibilité des données d'exposition et de la possibilité d'estimer rétrospectivement les doses individuelles. Par rapport aux études des cohortes des travailleurs de l'industrie nucléaire conduites au sein de l'IRSN, la collecte et la centralisation des données d'exposition tritium seraient un complément sur l'une des composantes de l'exposition des travailleurs aux rayonnements ionisants (en complément de l'exposition externe et d'éventuelles autres contaminations internes). La création d'une telle base de données (actuellement inexistante en France) est un préalable indispensable à la prise en compte du tritium dans le cadre d'études épidémiologiques.

Le constat de l'IRSN est également cohérent avec celui de la Commission Internationale de Protection radiologique (CIPR) qui souligne l'importance de poursuivre les études épidémiologiques, considérant que toute opportunité d'acquérir des données permettant d'évaluer directement le risque radiologique chez l'homme doit être soutenue [26].

4| Que sait-on des effets biologiques du tritium organique (OBT) ?

4|1| Etat de la question

Les données scientifiques actuelles montrent que le comportement du tritium dans l'organisme et donc son impact dosimétrique dépendent de sa forme physico-chimique (spéciation). Le tritium (T) dans l'organisme peut se présenter sous forme d'eau tritiée (HTO) ou être incorporé aux molécules organiques (tritium organique ou OBT pour "organically bound tritium"). Sous forme organique, le tritium peut être lié à l'oxygène, à l'azote, au phosphore ou au soufre et s'échanger facilement avec l'hydrogène du pool d'eau corporelle ; suite à cet échange, il aura alors le même métabolisme et la même distribution que HTO dans l'organisme. C'est ce qu'on appelle la forme échangeable du tritium organique OBT. Lorsque le tritium organique est lié au carbone (liaison forte H-C), il devient non échangeable avec l'hydrogène de l'eau. Cette forme non échangeable possède son propre métabolisme, s'incorpore aux constituants cellulaires et induit une distribution inhomogène de la dose délivrée.

Les modèles biocinétiques compartimentaux permettent de décrire l'absorption, la distribution et la rétention du tritium après son entrée dans l'organisme. Les modèles actuellement appliqués au tritium sont ceux développés par la CIPR et publiés notamment en 1989 [27] et 1993 [28].

Le modèle systémique actuellement recommandé pour l'eau tritiée (HTO) décrit que 97% de l'activité ingérée est incorporée en restant sous la forme HTO dans les tissus où elle est retenue avec une demi-vie de 10 jours, et que 3% de l'activité est transformée en tritium organique non échangeable (OBT), et retenue avec une demi-vie de 40 jours (cette dernière correspondant au turnover du carbone dans l'organisme).

Le modèle pour le tritium ingéré sous forme organique OBT considère que 50% de l'activité reste sous cette forme non échangeable tandis que 50% de l'activité est transformée en HTO par catabolisme, avec les demi-vies respectives citées précédemment.

La CIPR a publié en 1996 [29] les coefficients de dose (par activité incorporée, DPUI) d'une part pour l'adulte de référence, d'autre part pour des enfants de différentes classes d'âge, respectivement pour la forme HTO et celle OBT. Par exemple pour l'adulte, le coefficient de dose est égal à $4,2 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq quelle que soit la forme organique OBT considérée,

⁴ Etude d'observation rétrospective dans laquelle les caractéristiques des malades (les cas) sont comparées à celles de sujets indemnes de la maladie (les témoins)

⁵ Rapport des probabilités d'occurrence d'une maladie d'un groupe exposé et d'un groupe non exposé

à comparer à $1,8 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq pour l'eau tritiée HTO. A titre indicatif, le coefficient de dose du plutonium-239 pour l'adulte (ingestion) est de $2,5 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq, soit environ 6 000 fois plus que pour le tritium organique.

Dans sa publication n° 103 [30], la CIPR admet que des cas extrêmes de distribution très hétérogène des doses peuvent résulter de l'incorporation de précurseurs de l'ADN (par exemple la thymidine) marqués par du tritium, et que le noyau cellulaire peut recevoir des doses locales notablement supérieures à la dose moyenne. Elle souligne ainsi que les précurseurs de l'ADN peuvent être plus radiotoxiques que les composés tritiés, mais elle ne propose pas d'approche spécifique pour évaluer les doses liées à cette irradiation localisée de l'ADN.

Le groupe AGIR a analysé les données de la littérature concernant la biocinétique, issues d'études réalisées à la fois chez l'homme et chez l'animal, pour vérifier leur concordance avec les modèles biocinétiques développés par la CIPR. Son constat est qu'il y a un bon accord avec la conclusion de la CIPR selon laquelle la dose engagée due à l'incorporation de tritium sous forme d'OBT est, pour une même activité incorporée, supérieure d'un facteur 2 environ à la dose due au tritium sous forme d'HTO. Le rapport AGIR souligne aussi que certaines études publiées doivent être considérées avec prudence, l'état d'équilibre tel que rencontré dans les conditions d'exposition environnementale n'étant pas toujours atteint lors de l'expérimentation menée en laboratoire.

Par ailleurs, les auteurs de ce rapport décrivent un nouveau modèle biocinétique spécifique à la consommation de poissons (carrelets) contaminés au tritium, après avoir constaté une contamination élevée chez ces poissons pêchés dans la baie de Cardiff [31]. Ce modèle à deux compartiments suggère qu'après incorporation d'OBT (lié à de la chair de carrelets), la rétention du tritium organique chez l'adulte se fait à 70% avec une période de 10 jours et à 30% avec une période de 100 jours. Ainsi, un nouveau coefficient de dose a été déterminé à partir de ces modèles et évalué à $6 \cdot 10^{-11}$ Sv.Bq⁻¹, soit de 50% supérieur au coefficient de dose recommandé par la CIPR pour l'OBT ($4,2 \cdot 10^{-11}$ Sv.Bq⁻¹). Selon les auteurs du rapport, de nombreuses données tant animales qu'humaines suggèrent que l'élimination du tritium de l'organisme pourrait se faire avec une fonction exponentielle non pas à 2 mais 3 composantes, la 1ère composante représentant l'eau corporelle, la 2ème le tritium incorporé dans des composés organiques des tissus et la 3ème le tritium incorporé dans des composants structurels à faible taux de renouvellement. Les 2ème et 3ème composantes constitueraient la fraction d'OBT non échangeable. Le rapport du groupe AGIR précise que la CIPR a récemment publié un nouveau modèle pour HTO prenant en compte une période à long terme (qui conduit à des coefficients de dose légèrement inférieurs à ceux actuellement recommandés) et que la CIPR considère qu'il est impossible de donner un modèle unique pour l'OBT étant donné les formes très variables que cela peut concerner.

Enfin, le rapport AGIR évoque la problématique des précurseurs tritiés de l'ADN (typiquement la thymidine). Il conclut que le tritium utilisé pour le radiomarquage des acides nucléiques pourrait présenter un risque spécifique compte tenu de l'incorporation du précurseur par l'ADN mais que, en pratique, le risque d'exposition des travailleurs et du public demeure faible en raison des procédures de sûreté en vigueur dans les laboratoires de recherche modernes utilisant des radiomarqueurs.

4|2| Discussion

On peut admettre que les modèles dosimétriques de la CIPR sont satisfaisants pour l'eau tritiée (HTO) mais que le modèle unique défini pour les composés de tritium organiquement lié (OBT) n'est vraisemblablement pas parfaitement adapté à la grande diversité de composés susceptibles de se présenter sous cette appellation. En effet, une publication récente de D. Taylor [32] confirme que la biocinétique des molécules marquées dépend de la structure chimique et de la place du tritium dans la molécule. Un OBT soluble entrant dans le sang sera incorporé de façon plus ou moins importante dans les tissus corporels selon le composé chimique (spéciation) considéré et l'activité métabolique

des tissus individuels. Ayant étudié les cinétiques propres de rétention et d'excrétion de 10 molécules marquées différentes, Taylor a montré que les doses résultant de leur incorporation étaient inférieures à minima de 20% par rapport à celles calculées à partir du modèle de la CIPR pour les OBT. Ainsi, le modèle « par défaut » de la CIPR pour les OBT serait toujours majorant, conduirait à surestimer les doses et garantirait ainsi la robustesse du système de radioprotection.

Par ailleurs, on peut souligner que l'existence possible d'une composante de rétention/élimination à plus long terme du tritium dans l'organisme, non prise en compte dans les modèles actuels, ne devrait pas modifier significativement les valeurs des coefficients de dose dans la mesure où cette composante à long terme ne dépasserait pas quelques pourcents de l'activité incorporée. Enfin, selon une étude de Kotzer et Trivedi publiée en 2001 [33] portant sur des membres du public vivant dans l'environnement du réacteur de recherche de Chalk River (Canada) fonctionnant à l'eau lourde, la majeure partie de la dose reçue par la population générale résulte de l'incorporation d'eau tritiée et non pas de celle de tritium sous forme d'OBT au travers de la chaîne alimentaire.

Indépendamment de sa durée de rétention dans l'organisme qui diffère de la forme HTO, réparti de façon plus uniforme dans la cellule, le tritium sous forme OBT peut se trouver fixé à long terme sur les constituants cellulaires. Il irradie alors des cibles biologiques radiosensibles, alors que celles-ci ne sont pas ou peu atteintes par les désintégrations du tritium sous forme HTO, en raison du faible parcours de son rayonnement. En conséquence, si l'on considère que ces éléments ne sont pas pris correctement en compte dans les modèles dosimétriques en raison d'un déficit de données expérimentales décrivant les effets biologiques du tritium organique lié sur les constituants subcellulaires, un programme de recherche expérimentale dédié à cette problématique devrait être initié.

5| Quelle est l'efficacité biologique relative (EBR) du tritium ?

5|1| Etat de la question

L'efficacité biologique relative (EBR) d'un rayonnement de type donné est le rapport entre la dose de rayonnement de référence (X ou γ) et la dose du rayonnement à tester (le rayonnement β du tritium dans le cas présent) qui produisent un même effet biologique. L'expérience montre que l'EBR dépend du modèle animal ou cellulaire utilisé, de l'effet biologique considéré et des conditions d'irradiation (type de rayonnement, dose, débit de dose, fractionnement). Il y a donc autant de valeurs d'EBR qui peuvent être déterminées pour un rayonnement donné que d'effets biologiques et de niveaux de dose considérés.

Le plus souvent, le rayonnement de référence pour déterminer les EBR est soit le rayonnement gamma du cobalt-60 ou celui du césium-137, soit les rayonnements X de faible énergie (typiquement RX de 200 ou 250 kVp⁶). Il est à noter que l'utilisation de ces deux types de rayonnements comme référence conduit à une variabilité dans les évaluations d'EBR du fait de leur propre effet biologique distinct. **L'efficacité biologique relative du tritium a été étudiée quasi exclusivement pour l'eau tritiée.**

La CIPR, dans sa publication n° 103 [30], mentionne les travaux de Straume et Carsten [34] qui ont effectué une revue des données scientifiques sur les effets cancérogènes, génétiques, sur la reproduction et le développement, liés à une exposition au tritium (HTO et OBT) chez l'animal et in vitro. Alors que le spectre des effets observés avec le tritium ne se différencie pas de ceux observés après exposition de l'organisme entier à des rayons X ou gamma, les valeurs d'EBR pour HTO sont comprises entre 1 et 3,5, et cohérentes avec les évaluations fondées sur des considérations microdosimétriques. Les données concernant l'OBT sont limitées mais

⁶ kilo-volt pic

présentent des valeurs comparables à celles de l'HTO dans la plupart des cas, et sont supérieures pour les précurseurs de l'ADN tritiés.

Les structures de traces⁷ indiquent que les ionisations causées par le tritium dans les tissus sont de forte densité et pourraient causer des dommages difficilement réparables.

Un des choix faits par le groupe AGIR [2] est d'utiliser les rayonnements gamma de haute énergie plutôt que les rayonnements X comme rayonnement de référence pour les évaluations d'EBR du tritium. Ce choix est guidé principalement par des considérations biophysiques confortées par les résultats d'expérimentations sur les effets respectifs de ces deux types de rayonnement. En effet, ces calculs théoriques associés à des valeurs expérimentales ont montré que les électrons de faible énergie, tels que ceux produits par le tritium, induisent des effets biologiques plus importants que les rayonnements gamma de haute énergie. De façon générale, il a été montré que les valeurs d'EBR calculées pour le tritium étaient supérieures quand le rayonnement de référence utilisé était le rayonnement gamma du ⁶⁰Co plutôt que le rayonnement X. Le choix des auteurs de ce rapport a donc été de prendre comme rayonnement de référence le rayonnement γ du ⁶⁰Co.

L'approche microdosimétrique montre que l'énergie linéale moyenne⁸ correspondant à du tritium sous forme OBT lié aux sites cellulaires critiques est en effet environ 1,7 fois supérieure comparée à une forme HTO uniformément répartie dans la cellule, et ce dans une large gamme de dimensions de cibles d'intérêt biologique [35].

L'analyse critique effectuée par les auteurs du rapport AGIR a été faite principalement à partir de données provenant d'études sur modèles animal (rat ou souris), ce qui est le plus pertinent pour estimer un EBR applicable *in vivo*. Cette analyse est séparée en deux parties, une analyse détaillée à partir de cinq études, et une analyse globale à partir de tableaux de synthèse reprenant de nombreuses publications.

Le paramètre biologique le plus souvent pris en compte par les auteurs pour estimer les effets biologiques concerne la carcinogénèse, incluant le cancer du sein, les leucémies et autres cancers solides. D'autres paramètres biologiques relatifs aux effets génétiques ont également été pris en considération, comme l'induction d'aberrations chromosomiques stables et les effets sur la spermatogonie. Enfin, les auteurs se sont attachés à décrire quelques études *in vitro*, moins pertinentes pour décrire ce qui se passe réellement *in vivo*, mais dont la très bonne reproductibilité permet toutefois de donner des informations intéressantes. C'est donc une analyse très documentée qui a été faite par les auteurs de ce rapport, car fondée sur plus d'une vingtaine d'articles. De plus, certains EBR ont été calculés pour différents paramètres biologiques lors de la même étude, ce qui permet de faire une analyse comparative de ces EBR en fonction de l'effet biologique mesuré.

Quatre études de carcinogénèse très complètes ont été plus particulièrement détaillées : Gragtmans NJ *et al.*, 1984 [36], Johnson JR *et al.*, 1995 [37], Revina VS *et al.*, 1984 [38], Seyama T *et al.*, 1991 [39]. Les valeurs d'EBR rapportées dans ces études varient dans la gamme de 1,2 à 2,5 avec une valeur correspondant au 97,5 percentile inférieure à 3. Sur la base de ces études, les auteurs du rapport retiennent un EBR de 1,19 (intervalle de confiance CI à 95%, CI95% = 0,88-1,49) par rapport au rayonnement X et de 2,49 (CI95% : 2 – 2,98) par rapport au rayonnement gamma. Cependant les auteurs émettent des réserves sur deux de ces publications, une du fait d'une saturation de l'effet observé dès la plus faible dose [39], l'autre du fait de son rayonnement de référence différent (rayonnement gamma de césium-137) et des fortes doses administrées (25 Gy) [38].

D'autres études expérimentales ont été analysées par le groupe AGIR en considérant d'autres effets biologiques du tritium, notamment l'induction d'aberrations chromosomiques et la formation de micro-noyaux, la contamination ayant été réalisée *in vivo* (Kozlowski *et al.*, 2001 [40]) ou

in vitro (Prosser *et al.*, 1983 [41]). Ces études expérimentales conduisent à des valeurs d'EBR s'échelonnant entre 1,48 et 3,78 en considérant le rayonnement gamma comme référence. Globalement, on peut considérer que les valeurs moyennes d'EBR sont très proches, qu'elles proviennent d'expériences *in vivo* ou d'expériences *in vitro*, soit respectivement de 2,19 et 2,26 en sélectionnant les études utilisant le rayonnement gamma comme rayonnement de référence. Ceci conduit les auteurs du rapport à conclure que les études *in vitro* peuvent être considérées comme donnant de bonnes estimations d'EBR. On notera cependant que les valeurs d'EBR issues de certaines études diffèrent très fortement des valeurs moyennes de la littérature. C'est le cas de l'étude de Vulpis [42] qui trouve une valeur d'EBR de 8 dans le cas d'expériences *in vitro*.

En réalisant une analyse critique plus rigoureuse, fondée sur les études considérées comme optimales, les auteurs concluent, pour une exposition chronique, à des valeurs d'EBR de 2,19 (CI95% : 2,04 – 2,33) par rapport au rayonnement β et de 1,17 (CI95% : 0,96 – 1,39) par rapport au rayonnement X.

Par ailleurs, deux phénomènes sont invoqués comme pouvant conduire à un EBR plus important que celui actuellement retenu : la transmutation du tritium en hélium et la présence d'eau tritiée dans l'enveloppe entourant l'ADN. Ces deux aspects sont discutés dans le rapport AGIR. La revue publiée en 1971 par Feinendegen et Bond [43] ne conclut pas à un effet mesurable de cette transmutation, et les auteurs considèrent qu'en tout état de cause, les études expérimentales révéleraient cet effet, s'il se produisait. Pour ce qui concerne l'accumulation de tritium dans l'enveloppe hydratée de l'ADN, les auteurs du rapport concluent que cet effet est peu important, mais qu'il pourrait être un des facteurs responsables d'une augmentation de l'EBR mesurée expérimentalement par rapport aux calculs théoriques.

En conclusion, le groupe AGIR met en exergue la grande difficulté d'interprétation des études expérimentales pour la détermination de l'EBR. Ce paramètre dépend du rayonnement pris comme référence mais aussi des autres conditions expérimentales : dose et débit de dose, effet biologique testé. L'évaluation des effets de l'exposition aux rayonnements ionisants à des faibles doses dépend de la façon dont est faite l'extrapolation des fortes aux faibles doses et, par conséquent, de la forme de la relation dose-effet acceptée et finalement de la valeur adoptée pour le DDREF⁹.

5|2| Discussion

On rappellera que les données les plus pertinentes pour estimer les risques résultant d'expositions chroniques à faibles doses sont celles issues d'études de cancérogénèse. A ce titre, le rapport écrit par le groupe AGIR est de très bonne qualité et la démarche suivie par ses auteurs pour évaluer l'efficacité biologique du tritium est, sur la base des données d'EBR disponibles, la meilleure possible.

Les publications sur lesquelles s'appuient le groupe AGIR sont nombreuses. A la suite de la parution de ce rapport, une revue a d'ailleurs été publiée par Little et Lambert [44]. Cependant on notera qu'un certain nombre de travaux ne sont pas cités par les auteurs (e.g. travaux de Bathia en Inde [45], Zhuravlev en Russie [46], Geselowitz *et al.* aux USA [47]...).

L'analyse de ce rapport montre que l'EBR du tritium, et plus exactement de l'eau tritiée, est proche de 2,2 lorsque le rayonnement de référence est le rayonnement gamma du ⁶⁰Co et de 1,4 lorsqu'il s'agit de rayonnement X. Ce résultat n'est pas nouveau en soi et confirme les conclusions avancées précédemment par plusieurs auteurs (e.g. Bigildeev *et al.*, 1992 [48] ; Prestwich et Kwok, 1993 [49]), y compris la CIPR, 1989 [50]).

⁷ La trace désigne la série des interactions produites dans la matière par la particule tout au long de sa trajectoire

⁸ L'énergie linéale, exprimée en J.m⁻¹, est le quotient de l'énergie communiquée à la matière dans un volume donné lors d'un événement (de dépôt d'énergie) unique, par la longueur moyenne de corde dans ce volume

⁹ Le DDREF (Dose and dose rate effectiveness factor) est un paramètre qui rend compte de la forme curvi-linéaire de la relation dose-réponse des rayonnements de faible TEL dont la pente est moindre aux faibles doses et faibles débits qu'aux fortes doses et forts débits.

Cependant, des nuances sont à apporter concernant les études sur le tritium. Tout d'abord, les études dites d'expositions chroniques détaillées dans le rapport s'apparentent plutôt à des études d'expositions aiguës pour lesquelles la contamination se fait dans la majorité des cas par une injection unique d'HTO, ou dans le meilleur des cas par des injections répétées. Ces études sont plus à caractère 'long terme' que chronique. En effet, on considère en toxicologie qu'une exposition est dite chronique lorsqu'elle est supérieure à 90 jours. **La question de l'EBR reste donc posée pour une exposition chronique pendant plusieurs mois à l'eau tritiée. En outre, aucune donnée n'est disponible pour les formes organiques du tritium, ce qui laisse la question ouverte de l'EBR pour ces différentes formes.**

Par ailleurs, le pouvoir d'arrêt des électrons augmente à mesure que leur énergie diminue. Corrélativement, les électrons de faible énergie ont des densités d'ionisation supérieures aux électrons de plus forte énergie et aux électrons mis en mouvement par l'interaction des photons X ou γ avec la matière. Ceci va dans le sens d'une efficacité biologique relative du tritium supérieure à celle des photons utilisés comme rayonnement référence dans les expériences d'EBR. Les calculs théoriques de microdosimétrie effectués par Chen [35] prédisent une efficacité biologique plus élevée d'un facteur 1,7 pour le tritium sous forme OBT fixé sur les cibles biologiques, comparé à HTO uniformément réparti dans la cellule. On notera cependant que seule une fraction de l'OBT incorporée (50%) reste sous cette forme une fois dans l'organisme, l'autre partie étant transformée en HTO.

Il faut également souligner que la question du choix du rayonnement de référence pour l'évaluation des EBR est une question générale en radiobiologie pour comparer différents types de rayonnements et n'est pas propre au tritium.

Au final, il existe donc une grande difficulté pour interpréter les expériences visant à déterminer l'**efficacité biologique relative (EBR)**. Le débat sur la valeur de l'EBR du tritium n'est pas nouveau. En effet, si pour les rayonnements bêta et gamma, le Comité Scientifique pour l'étude des effets des rayonnements ionisants (UNSCEAR) recommande une valeur générique de 1 pour l'EBR dans son rapport sur les effets des rayonnements sur les espèces non-humaines¹⁰, il considère que le choix de la valeur la plus appropriée pour les bêta de faible énergie (< 10 keV) reste une question ouverte et qu'elle devrait faire l'objet de recherches futures.

Sans tenir compte du paramètre 'débit de dose', on notera que la moyenne des valeurs d'EBR obtenue pour le tritium par rapport au ⁶⁰Co est supérieure à 2, et supérieure à 1 par rapport aux rayons X de 250 kVp. Malgré les difficultés d'interprétation, on observe que l'examen des EBR est qualitativement en bon accord avec la microdosimétrie de ces rayonnements et reste une approche robuste étant donné qu'elle intègre expérimentalement l'ensemble des paramètres pertinents (critères biologiques, niveaux de dose, débits de dose, rayonnement de référence).

6 | Faut-il revoir le facteur de pondération pour le rayonnement dans le cas du tritium ?

6.1 | Etat de la question

Le facteur de pondération pour le rayonnement, w_R , sert à pondérer la dose absorbée dans les tissus, en fonction de la nature du rayonnement, pour calculer la dose équivalente aux différents tissus ainsi que la dose efficace. La dose efficace est définie pour un individu de référence ; elle ne tient compte ni de l'âge, ni du sexe, ni de l'état de santé, ni de tout autre facteur influençant la radiosensibilité individuelle des personnes exposées. Elle est utilisée comme outil de gestion du risque d'effets stochastiques, pour contrôler la limitation et l'optimisation des doses reçues par les

travailleurs ou les membres du public exposés aux rayonnements ionisants. Elle ne doit pas être utilisée pour l'évaluation du risque individuel. C'est pourquoi, les facteurs de pondération pour les rayonnements sont une représentation volontairement simplifiée des différentes efficacités de différents rayonnements à causer des effets stochastiques à faibles doses et faibles débits de dose.

D'une façon générale, le facteur de pondération est déterminé principalement à partir de l'efficacité biologique relative (EBR), idéalement sur la base de données d'investigations in vivo relatives aux effets stochastiques, et plus particulièrement des valeurs maximales de l'EBR obtenues à faibles doses et faibles débits de dose. Les valeurs d'EBR issues d'expérimentations in vitro sans relation directe avec la cancérogénèse ne doivent en principe pas être prises en compte.

La valeur du facteur de pondération w_R actuellement attribuée par la CIPR à tous les photons, y compris les rayonnements X de faibles énergies, ainsi qu'à tous les rayonnements bêta, y compris celui du tritium, est égale à 1 [30].

En réponse au rapport du groupe AGIR qui recommande de modifier cette valeur du w_R pour le tritium, la CIPR a expliqué sa position en juin 2008 [26]. Ses principaux arguments pour ne pas modifier la valeur du facteur de pondération du tritium sont les suivants :

- l'attribution de la valeur 1 au facteur de pondération w_R pour les rayonnements à faible TEL¹¹ dont le tritium est l'une des simplifications qui sont faites dans le système général de radioprotection. Le raffinement des calculs de dose équivalente et de dose efficace n'est pas justifié et pourrait suggérer un niveau de précision plus important que ne le permettent réellement les connaissances actuelles ;
- pour des évaluations de risque, les données disponibles sur l'EBR pour le tritium par rapport aux rayonnements gamma suggèrent qu'une valeur de 2 serait plus appropriée pour l'induction de cancers aux faibles doses d'exposition. Cependant, cette conclusion s'appuie sur les résultats d'études cellulaires in vitro, peu informatifs pour ce qui concerne la carcinogénèse in vivo. Des considérations sur la relation qui existe entre l'EBR et le DDREF (cf. § 5.1) suggèrent une faible valeur d'EBR du tritium pour l'induction de cancer chez l'homme aux faibles doses et faibles débits de dose.

6.2 | Discussion

On rappellera les propos de la CIPR [26] : *la nature des effets biologiques observés après exposition au tritium chez l'animal et in vitro ne semble pas différente de celle des effets produits par une exposition de l'organisme entier à des rayonnements X et gamma.*

La question posée est donc celle de la quantification des effets susceptibles d'être produits par le tritium et non pas celle plus large de la nature de ces effets. Cette question doit être examinée en tenant compte de l'objectif visé :

- S'agissant d'évaluer le risque individuel dans une situation d'exposition particulière, il est nécessaire d'utiliser au mieux l'ensemble des données disponibles, tant en ce qui concerne l'individu concerné (âge, sexe, paramètres physiologiques et anatomiques) que les caractéristiques de l'exposition (type de rayonnement, dose, débit de dose, durée d'exposition). Ceci est d'autant plus important que le niveau d'exposition considéré est élevé. On peut estimer que les données disponibles, obtenues tant par l'approche microdosimétrique que par les études expérimentales sur les effets biologiques en lien avec le cancer, sont cohérentes et tendent à retenir, dans ce contexte, une valeur de l'EBR plutôt de 2 que de 1 pour le tritium lorsque le rayonnement de référence est le rayonnement gamma.

¹⁰ Rapport à paraître en 2009

¹¹ Transfert d'énergie linéique

- S'agissant de gérer le risque individuel, il convient de disposer de concepts et d'outils fondés sur les meilleures connaissances scientifiques du moment, mais suffisamment simples pour être opérationnels. On observe que, pour le tritium, les expositions sont généralement faibles, voire très faibles, et que les individus concernés sont le plus souvent soumis à de multiples autres types d'expositions. Dans ce contexte et compte tenu des incertitudes qui demeurent par ailleurs, il n'est pas nécessaire de raffiner la valeur du facteur de pondération pour le rayonnement, w_R , qui intervient dans le calcul de la dose efficace. La valeur de 1 retenue par la CIPR est une approximation qui apparaît justifiée. On rappelle à cet égard que cette position est celle admise pour d'autres radionucléides que le tritium, mais aussi pour les rayonnements X. En tout état de cause, le fait de multiplier ce facteur par 2, et par suite les coefficients de dose et les évaluations de dose qui en résultent, ne changerait pas fondamentalement les choses vis-à-vis du risque à gérer en pratique.

7 | Conclusion et perspectives

Le risque sanitaire résultant d'une exposition chronique au tritium suscite un nouveau questionnement pour des raisons contextuelles politiques et sociétales, liées au développement de nouveaux réacteurs nucléaires (EPR, ITER) et à l'utilisation de combustibles à hauts taux de combustion qui induiront à terme une augmentation des rejets de tritium dans l'environnement.

Historiquement, le tritium est un des radionucléides qui a été le plus étudié. L'essentiel des connaissances acquises est fondé sur ses effets biologiques observés expérimentalement *in vitro* et *in vivo* sous sa forme physico-chimique d'eau tritiée (HTO), ceci dans des conditions qui ne sont pas toujours représentatives des situations d'expositions chroniques environnementales. Les études épidémiologiques sur les populations humaines sont peu informatives sur les risques potentiels associés à une exposition au tritium, par manque de puissance statistique et par manque d'informations sur la dose due au tritium. Faute de disposer de données épidémiologiques fiables, le risque radiologique du tritium a été estimé par une approche dosimétrique comportant différentes étapes (modélisation biocinétique du comportement du tritium dans l'organisme, calcul de la dose absorbée dans les tissus de rétention, pondération de la dose absorbée par un coefficient prenant en compte les propriétés physiques et biologiques du tritium). A cet égard, le tritium n'est pas un cas particulier. Même si les estimations de doses et de risques consécutifs à une exposition interne par des radionucléides sont entachées d'incertitudes, cette approche fondée sur le calcul dosimétrique pour estimer le risque radiologique s'est jusqu'à présent révélée être robuste. Elle a ainsi conduit pour d'autres radionucléides tels que le radon ou le ^{239}Pu à des estimations de risque cohérentes par rapport aux résultats d'études épidémiologiques.

Cette approche dosimétrique du risque place le tritium parmi les radionucléides les moins radiotoxiques ainsi que l'illustre la figure 1 où sont reportées par ordre croissant les valeurs des coefficients de dose déterminées pour plus de 700 radionucléides, dans le cas d'une incorporation par ingestion chez un enfant de 1 à 5 ans. Il est à noter que l'échelle en ordonnées est de type logarithmique.

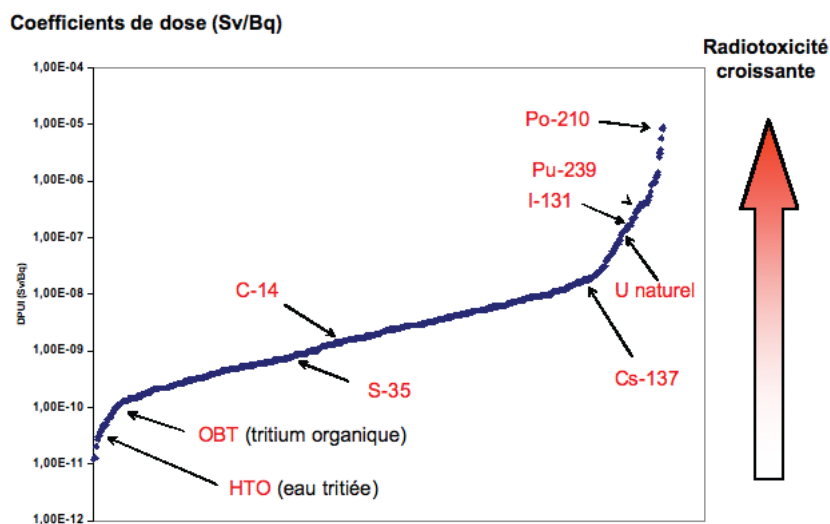
Des publications récentes sur le tritium sont susceptibles de modifier certains paramètres biocinétiques des modèles dosimétriques, mais pas de changer très fortement la valeur des coefficients de dose utilisés actuellement pour les calculs de dose efficace.

Les données scientifiques actuelles montrent par ailleurs que l'efficacité biologique relative (EBR) de ce radionucléide est plus proche de 2 que de 1. S'agissant d'évaluer le risque individuel dans une situation d'exposition particulière (niveau élevé d'exposition notamment), il serait justifié de considérer l'utilisation d'un EBR de 2. S'agissant de calculer la dose efficace utilisée pour gérer le risque, en particulier dans le domaine des faibles doses, la valeur actuelle de 1 retenue par la CIPR pour le facteur de pondération w_R reste cependant une simplification acceptable, à l'instar du choix fait pour d'autres radionucléides émetteurs bêta et pour les rayonnements X de faibles énergies.

Pour ce qui concerne le risque lié plus particulièrement à la forme organique du tritium (OBT), certaines données scientifiques font défaut sur le métabolisme et les effets biologiques associés au tritium organique en situation d'expositions environnementales (chroniques et à faibles débits de dose). Ainsi, des études permettant la caractérisation des différentes formes physico-chimiques (études de spéciation) sous lesquelles le tritium organique est susceptible d'atteindre l'homme devraient être menées. De la même manière, des études de radiobiologie expérimentale pour évaluer les effets biologiques des diverses formes possibles d'OBT sur les différentes classes d'âge et plus particulièrement sur le fœtus et l'embryon devraient être conduites. Néanmoins il conviendra au préalable de définir un modèle expérimental représentatif et de disposer d'un plateau technique performant et adapté en raison du caractère labile de ce radionucléide. Un tel plateau technique ne peut être envisagé que dans le cadre d'un programme concerté d'envergure nationale, voire de coopérations à l'échelle de l'Europe. Ce sujet devrait faire l'objet de discussions plus approfondies dans le cadre des propositions de programmes de recherche sur les risques aux faibles doses qui sont en cours à la suite des recommandations du groupe européen HLEG¹², tenant compte des priorités à accorder aux différents radionucléides d'intérêt et de l'état des lieux des infrastructures existantes pour mener à bien ces recherches.

Par ailleurs, il est nécessaire de poursuivre des études épidémiologiques chez les travailleurs en France, en considérant l'opportunité d'acquérir des données relatives à l'exposition au tritium et l'intérêt de traiter ces données de manière harmonisée avec les autres études initiées sur ce sujet

Fig1 : distribution des coefficients de dose (ingestion, enfant de 1 à 5 ans) des radionucléides



¹² <http://www.hleg.de/>

au plan international. Seules des études multi-centriques internationales ont potentiellement la puissance statistique suffisante pour apporter une réponse épidémiologique pertinente. Toutefois, faire la part du risque radiologique attribuable au tritium chez les travailleurs des installations nucléaires par ailleurs soumis à d'autres types d'expositions radiologiques est une difficulté non négligeable à prendre en compte lors de la planification de telles études épidémiologiques.

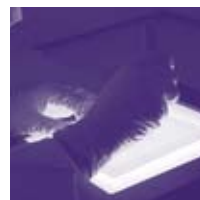
Pour ce qui concerne les populations riveraines des installations nucléaires, le problème de la puissance statistique des études épidémiologiques est d'autant plus aigu que les doses dues au tritium sont extrêmement faibles (de l'ordre du $\mu\text{Sv/an}$ à la dizaine de $\mu\text{Sv/an}$ pour les groupes les plus exposés). Ces doses tritium ne représentent en moyenne qu'une petite fraction de la dose totale résultant de l'ensemble des radionucléides et des voies d'exposition des membres du public. En conséquence, il est impossible de mettre en évidence par des études épidémiologiques un éventuel excès de risque à ces niveaux d'exposition et de ce fait il n'est pas pertinent de mener de telles études chez les populations générales.

Enfin, Il est important de réduire les expositions au tritium des membres du public aux niveaux les plus bas raisonnablement possibles, en tenant compte de l'ensemble des autres sources d'exposition. Les procédés industriels générateurs d'effluents tritiés (traitement des effluents dans les réacteurs, retraitement du combustible...) ne permettent pas, contrairement à d'autres radionucléides, un stockage efficace et durable du tritium produit, dans des conditions économiques acceptables. C'est pourquoi l'optimisation des rejets d'effluents tritiés doit être un objectif à atteindre. Une meilleure gestion du tritium passe, d'une part par une meilleure connaissance et la réduction à la source des différents contributeurs d'effluents liquides et gazeux produits par les installations, d'autre part par la recherche des solutions techniques et des modalités de rejets optimales pour limiter l'impact de ces rejets sur l'environnement et l'homme.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] IRSN. Le tritium de l'environnement à l'homme. Coordinateurs Belot Y., Roy M. et Métivier H., Les éditions de Physique (1996)
- [2] AGIR. *Review of risks from tritium*. Report of the Independent Advisory Group on Ionising Radiation. Health Protection Agency (2007). Ce rapport peut être téléchargé sur le site Internet www.hpa.uk.org
- [3] European Commission. *Emerging issues on tritium and low-energy beta emitters*. Proceeding of a seminar held in Luxembourg on 13 November 2007. Radiation Protection n° 152. European Commission (2008)
- [4] http://ccsn.gc.ca/fr/getinvolved/sessionworkshop/past/workshop_20080118/Wkshop_20080118_summary.cfm
- [5] ANCCLI. Le Tritium, discret mais présent partout (http://www.anccli.fr/gpmdr/colloque_tritium/index.html)
- [6] CERRIE. Report produced by the Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters. London, 31 pp., 2004
- [7] Goodhead D. Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters. Press release, October 20th, 2004
- [8] Milacic S. *Changes in leukocytes caused by tritium contamination*. Health Physics, 86 (5), pp. 457-459, 2004
- [9] Cardis E et al. (2007). *The 15-Country Collaborative Study of Cancer Risk among Radiation Workers in the Nuclear Industry: estimates of radiation-related cancer risks*. Radiat Res, 167 (4), 396-416
- [10] Omar RZ, Barber JA and Smith PG (1999). *Cancer mortality and morbidity among plutonium workers at the Sellafield plant of British Nuclear Fuels*. Br J Cancer, 79, 1288-301
- [11] McGeoghegan D and Binks (2000). *The mortality and cancer morbidity experience of workers at the Capenhurst uranium enrichment facility, 1945-95*. J Radiol Prot, 20, 381-401
- [12] Beral V, Fraser P, Booth M, Brown A and Rose G (1988). *Mortality of employees of the Atomic Weapons Establishment, 1951-82*. Br Med J, 297, 757-70
- [13] Johnson P, Atkinson WD and Nicholls JL (1999). *Updated analysis of mortality in workers at UK atomic weapons establishments*. In *Achievements and challenges: advancing Radiation Protection into the 21st Century*. Proceedings 6th SRP International Symposium, Southport, June 1999 (MC Thorne, ed). London, Society for Radiological Protection
- [14] Cragle DL, Watkins JP and Robertson-DeMers K (1998). *Mortality among workers at the Savannah River nuclear fuels production facility*. In *Proceedings of the Section on Statistics in epidemiology*. Alexandria VA, American Statistical Association, pp 83-87. URL: www.orau.gov/ehsd/EpidProceedings-jj-9-30-98.doc
- [15] Schubauer-Berigan MK, Daniels RD, Fleming DA, Markey AM, Couch JR, Ahrenholz SH, Burphy JS, Anderson JL and Tseng CY (2007). *Risk of chronic myeloid and acute leukemia mortality after exposure to ionizing radiation among workers at four US nuclear weapons facilities and a nuclear naval shipyard*. Radiat Res, 167 (2), 222-32
- [16] Richardson RB, Trivedi A and Greenstock CL (1998). *Dosimetry of organically bound tritium derived from diet- Phase I*. Report for the Atomic Energy Control Board, Canada, AECB Project N° 3.135.2
- [17] Zablotska LB, Ashmore, JP and Howe GR (2004). *Analysis of mortality among Canadian nuclear power industry workers after chronic low-dose exposure to ionizing radiation*. Radiat res, 161, 633-41
- [18] Grosche B, Lackland D, Mohr L, Dunbar J, Nicholas J, Burkart W and Hoel D (1999). *Leukemia in the vicinity of two tritium releasing facilities: a comparison of the Kruemmel Site, Germany, and the Savannah River Site, South Carolina, USA*. J Radiol Prot, 19, 243-52
- [19] Clarke EA, McLaughlin J and Anderson TW (1989). *Childhood leukaemia around Canadian nuclear facilities- Phase I. Final Report*. Report INFO-0300. Ottawa, Atomic Energy Control Board
- [20] Clarke EA, McLaughlin J and Anderson TW (1991). *Childhood leukaemia around Canadian nuclear facilities- Phase II. Final Report*. Report INFO-0300-2. Ottawa, Atomic Energy Control Board
- [21] Johnson KC and Rouleau J (1991). *Tritium releases from the Pickering nuclear generating station and birth defects and infant mortality in nearby communities, 1971-1988*. AECB Project n° 7.156.1. Report INFO-0401. Ottawa, Atomic Energy Control Board
- [22] Richter BS and Stockwell HG (1998). *Descriptive study of deaths from cancer associated with residential proximity to the site of underground nuclear detonations*. Arch Environ Health 43, 109-13
- [23] Green LM, Dodd L, Miller AB, Tomkins DJ, Li J and Escobar M (1997). *Risk of congenital anomalies in children of parents occupationally exposed to low level ionising radiation*. Occup Environ Med, 54, 629-635
- [24] Mc Laughlin J, Anderson TW, Clarke EA and King W (1992). *Occupational exposure of fathers to ionizing radiation and the risk of leukaemia in offspring – A case-control study*. AECB Project n° 7.157.1. Report INFO-0424. Ottawa, Atomic Energy Control Board
- [25] Mc Laughlin J, King WD, Anderson TW, Clarke EA and Ashmore JP (1993). *Paternal radiation exposure and leukaemia in offspring: the Ontario case-control study*. Br Med J, 307, 959-66, Errata: 307, 1257, 1462
- [26] Cox R., Menzel H.G. and Preston J. *Internal dosimetry and tritium—the ICRP position*. J. Radiol. Prot. 28 (2008) 131–135.

- [27] ICRP (1989). *Age-dependent doses to members of the public from intakes of radionuclides: part 1*. ICRP Publication 56. Ann ICRP 20 (2)
- [28] ICRP (1993). *Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2. Ingestion dose coefficient*. ICRP Publication 67. Ann. ICRP 23 (3/4)
- [29] ICRP (1996). *Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 5*. ICRP Publication 72. Ann. ICRP 26 (1)
- [30] ICRP (2007). *The 2007 recommendations of the International Commission on Radiological Protection*. ICRP Publication 103, 37 (2-4)
- [31] Hodgson A, Scott JE, Fell TP and Harrison JD (2005). *Radiation doses from the consumption of Cardiff Bay flounder containing organically bound tritium (OBT)*. J Radiol Prot, 25, 149-59
- [32] Taylor D. *Radiation doses from some ^3H -labelled organic compounds following ingestion* (2008). Radiat.Prot. Dosim., 128 (3), 299-308
- [33] Kotzer T. and Trivedi A. (2001). *Dosimetric implications of atmospheric dispersal of tritium near a heavy-water research reactor facility*. Radiat Prot Dosim, 93 (1), 61-66
- [34] Straume T and Carsten AL (1993). *Tritium radiobiology and relative biological effectiveness*. Health Physics, 65, 657-672
- [35] Chen J (2006). *Radiation quality of tritium*. Radiat. Prot. Dosim., 122, 546-8
- [36] Gragmans NJ, Myers DK, Johnson JR, Jones AR and Johnson LD (1984). *Occurrence of mammary tumors in rats after exposure to tritium beta rays and 200-kVp X-rays*. Radiat Res, 99, 636-50
- [37] Johnson JR, Myers DK, Jackson JS, Dunford DW Gragmans NJ, Wyatt HM, Jones AR and Percy DH (1995). *Relative biological effectiveness of tritium for induction of myeloid leukaemia in CB/H mice*. Radiat Res, 144, 82-9.
- [38] Revina VS, Voronin VS, Lemberg VK, and Sukhodoev VV (1984). *Comparative evaluation of the tumorigenic effect of chronic exposure to tritium oxide and external gamma radiation*. Radiobiologiya, 24, 697-700
- [39] Seyama T, Yamamoto O, Kinomura A and Yokoro K (1991). *Carcinogenic effects of tritiated water (HTO) in mice: In comparison to those of neutrons and gamma-rays*. J Radiat Res , Supplement 2, 132-42
- [40] Kozlowski R, Bouffler SD, Haines JW and Cox R (2001). *In utero haemopoietic sensitivity to alpha, beta or X-irradiation in CBA/H mice*. Int J Radiat Biol, 77(7), 805-15
- [41] Prosser JS, Lloyd DC, Edwards AA and Stather JW (1983). *The induction of chromosome aberrations in human lymphocytes by exposure to tritiated water*. Radiat Prot Dosim, 4, 21-6
- [42] Vulpis N (1984). *The induction of chromosome aberrations in human lymphocytes by in vitro irradiation with β particles from tritiated water*. Radiat Res, 97, 511-18
- [43] Feinendegen LE and Bond VP (1971). *Transmutation versus beta irradiation in the pathological effects of tritium decay*. In Tritium (AA Moghissi and Carter, eds). Nevada, Messenger Graphics, 221-31
- [44] Little MP, Lambert BE (2008). *Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium*. Radiat Environ Biophys 47 : 71-93
- [45] Bathia AL (1977). *Tritium toxicity in mouse testes: effect of fractionated dose during post-natal development*. Radioisotopes, 26 (11), 780-3
- [46] Zhuravlev VF (2001). *Comparative toxicity of tritium oxide for various types of animals*. Toxicol Appl Pharmacol, 172 (3), 233-40
- [47] Geselowitz DA, McManaway ME, Hofer KG and Neumann RD (1973). *The cytotoxicity of decays of tritium and iodine-125 incorporated in DNA of mammalian cells*. Implications for the low-LET dosimetry of incorporated radionuclides. 36 (5), 713-24
- [48] Bigildeev EA, Michalik V and Withelmova (1992). *Theoretical estimation of quality factor for tritium*. Health Phys, 63, 462-463
- [49] Prestwich WV and Kwok CS (1993). *The quality factor for the electron degradation spectrum of tritium in water*. Radiat Prot Dosim, 46 (3), 195-200
- [50] ICRP (1989). *RBE for deterministic effects*. ICRP Publication 58. Ann. ICRP 20 (4)



Tritium : limites de rejets et impact

Michel Chartier,
Service d'Etudes et d'Expertise en Radioprotection - IRSN
Rapport DRPH/SER n°26-2009

Abstract

The opinion of IRSN is required by ASN on the limits submitted by operators in the "discharge" reports as well as on the radiological impact of such discharges. Tritium is one of the radionuclides which are analysed. It is described here the technical items on which IRSN focuses.

Mots-clés

Rejet, Tritium, Impact, Limite

Résumé

L'avis de l'IRSN est régulièrement sollicité par l'ASN sur les limites demandées par les exploitants dans les dossiers « rejets » ainsi que sur l'impact radiologique de ces rejets. Le tritium fait partie des radionucléides examinés. On décrit ici succinctement les points techniques sur lesquels l'IRSN porte une attention particulière.

1 | Limites de rejet de tritium

Aucune technique de réduction des rejets de tritium n'est aujourd'hui appliquée à une échelle industrielle, induisant le rejet de la quasi-totalité du tritium produit par, ou entrant dans, les installations nucléaires. Néanmoins, plusieurs questions font l'objet d'un examen approfondi par l'IRSN pour établir les éléments techniques qui permettent à l'ASN de fixer des limites et des conditions de rejet pour ce radionucléide. Ces questions sont brièvement passées en revue ci-dessous.

1|1 | Limites annuelles

Pour donner un avis sur les limites annuelles de rejet (Bq/an) de tritium demandées par un exploitant, il est nécessaire dans un premier temps d'estimer les quantités maximales susceptibles d'être rejetées, ceci pour des conditions de fonctionnement de l'installation qui soient à la fois enveloppes des conditions réelles et conformes à celles mentionnées dans les documents de sûreté.

De telles estimations reposent soit sur des calculs théoriques soit, prioritairement lorsqu'ils sont disponibles, sur les résultats de l'expérience d'exploitation. Dans ce dernier cas, des ajustements sont généralement nécessaires, par exemple pour corriger ces résultats en fonction :

- des conditions de fonctionnement enveloppes de l'installation,

- des effets de stockage et de déstockage du tritium au cours d'une année civile, période sur laquelle sont définies les limites annuelles de rejet,
- des performances des dispositions de mesure du tritium dans les rejets.

Le cas échéant, des réductions des limites de rejets demandées sont proposées sur la base de ces estimations.

En complément, la comparaison entre la production annuelle de tritium ou les activités de tritium entrant dans l'installation d'une part, les activités du tritium dans les rejets d'autre part, permet d'apprécier les activités du tritium transférées dans les déchets solides.

1|2 | Limites de rejet dans les effluents gazeux vs. les effluents liquides

Pour certaines installations, notamment en bord de mer, le rejet d'une même activité de tritium conduit à un impact différent sur les groupes de référence suivant que ce rejet s'effectue sous forme liquide ou sous forme gazeuse. Généralement, l'impact d'une activité rejetée dans les effluents liquides est inférieur à celui de la même activité rejetée dans les effluents gazeux.

Afin de réduire globalement l'impact des rejets de tritium, il importe donc d'examiner dans quelle mesure des dispositions matérielles ou organisationnelles peuvent permettre de réduire les rejets de tritium dans les effluents gazeux au profit des effluents liquides.

1|3| Étalement des rejets

Les modalités de rejet constituent un sujet essentiel. En particulier, l'étalement des rejets de ce radionucléide permet d'en limiter les concentrations dans l'environnement et donc de limiter l'impact radiologique associé. Cet étalement est notamment recherché pour les rejets de tritium dans les effluents liquides, d'une part parce que le tritium est majoritairement rejeté dans les effluents liquides pour la plupart des installations, d'autre part parce que ces rejets s'effectuent de façon concertée et que les modalités des rejets sont donc bien maîtrisables par l'exploitant. Pour autant, la même approche est recherchée pour les rejets de tritium dans les effluents gazeux, en particulier quand ceux-ci sont significatifs et peuvent être rejetés de manière concertée.

La principale disposition réglementaire pour imposer l'étalement des rejets est la limitation des débits de rejets. D'autres dispositions contribuent également à l'objectif de maîtrise des concentrations du tritium dans l'air et dans l'eau, comme par exemple l'interdiction de rejet d'effluents radioactifs en période d'étiage ou la limitation des concentrations de tritium mesurées dans l'environnement.

1|4| Limitation des activités volumiques mesurées dans les milieux récepteurs des rejets (atmosphère ; eau du milieu aquatique récepteur)

L'arrêté du 26 novembre 1999 (fixant les prescriptions générales relatives aux limites et aux modalités des prélèvements et des rejets soumis à autorisation, effectués par les installations nucléaires de base) a introduit des limitations pour les activités volumiques des radionucléides mesurées dans les milieux récepteurs (eau et air). De telles limites sont notamment prescrites pour le tritium pour la plupart des installations qui en rejettent. Par nature, ces limites concernent les activités volumiques cumulées de tritium dans l'environnement, c'est-à-dire la somme des activités volumiques ajoutées par les installations et des activités volumiques constitutives du bruit de fond. Les limites correspondantes sont orientées vers la protection des personnes et de l'environnement (en limitant les activités volumiques dans l'air et dans l'eau, on limite l'impact quels que soient le bruit de fond et les conditions de dispersion), même si elles jouent également un rôle pour la maîtrise des rejets de chaque installation (on tient compte du bruit de fond pour moduler les rejets).

Une activité volumique de tritium de l'ordre de 140 Bq/L en moyenne journalière a été généralement retenue pour l'eau en aval des centrales nucléaires installées en bord de rivière. Du point de vue de la radioprotection, cette limite peut être considérée comme basse. En effet, à titre d'illustration, une consommation journalière de 2 L d'eau de la rivière à cette valeur de concentration, sans aucune dilution supplémentaire (affluents, précipitations, réseau de distribution d'eau potable...), conduirait à une dose efficace inférieure à 2 µSv/an. En pratique, cette valeur est compatible avec l'exploitation des centrales, mais avec une marge limitée (en cas de dépassement, l'exploitant doit suspendre les rejets éventuellement en cours). En effet, en tenant compte de la limitation sur l'activité volumique de tritium ajoutée dans l'environnement, généralement fixée à 80 Bq/L, cette valeur laisse seulement 60 Bq/L de marge pour couvrir :

- les incertitudes de mesure,
- les éventuelles variations du débit du cours d'eau pendant la journée,
- le bruit de fond en amont de la centrale.

On notera enfin que l'ordre de grandeur de la limite d'activité volumique de tritium dans l'eau en aval des centrales a été fixée indépendamment des autorisations de rejet spécifiques des centrales (nombre de tranches, gestion des combustibles, etc.), conformément à l'objectif de protection de la population visé par cette limite.

Enfin, dans le même objectif de limiter les activités volumiques cumulées de tritium (et des autres radionucléides) dans l'eau, dans le cas de la Loire, les rejets concomitants des centrales concernées sont encadrés en cas d'étiage. EDF a mis en place une gestion coordonnée des rejets d'effluents liquides des centrales à l'échelle du bassin de la Loire.

1|5| Gestion des étiages et des crues

Les rejets d'effluents radioactifs liquides sont interdits en situation de crue ou d'étiage du cours d'eau récepteur. Pour déterminer les plages optimales de débit du cours d'eau pour les rejets d'effluents radioactifs, en particulier pour les cas sensibles d'installations nucléaires rejetant leurs effluents liquides dans des cours d'eau à débit réduit, l'IRSN examine notamment :

- la fréquence et les durées des périodes de crue et d'étiage enregistrées pour le cours d'eau,
- les contraintes d'exploitation induites par l'interdiction de rejet pendant de telles périodes (capacités de stockage du tritium dans l'installation notamment).

Sur cette base, l'IRSN analyse les plages de débit proposées par l'exploitant et propose des limites. Le cas échéant, l'IRSN pourrait être amené à préconiser une augmentation des capacités de stockage dans l'installation.

Il est à noter que le débit minimum du cours d'eau est une donnée également utilisée pour calculer les impacts environnemental et sanitaire des substances chimiques rejetées avec les effluents radioactifs liquides. En conséquence, l'IRSN tient compte du résultat du calcul de ces impacts pour préconiser une valeur minimale de débit permettant les rejets d'effluents liquides.

2| Impact radiologique des rejets de tritium

2|1| Modélisation des transferts d'eau tritiée dans l'environnement dans le cadre des études réglementaires

Les rejets de tritium des installations nucléaires françaises sont effectués très majoritairement sous forme d'eau tritiée (HTO). Des considérations physiques, confortées par l'observation, montrent que, dans ce cas, aucun enrichissement isotopique significatif n'intervient lors des transferts du tritium dans les compartiments de l'environnement (voir par exemple la publication de B. Fiévet¹ pour le cas des rejets liquides de tritium de l'usine de La Hague). L'ordre de grandeur du rapport isotopique moyen du tritium sur l'hydrogène dans l'eau à proximité des végétaux est retrouvé dans l'eau de constitution et dans la matière organique des végétaux et, plus loin dans la chaîne alimentaire, dans les produits d'origine animale. Les modèles d'impact fondés sur la méthode dite « d'activité spécifique », développés par l'IRSN et par la plupart des exploitants pour les calculs réalisés dans le cadre réglementaire, reposent sur ce constat. Certains modèles introduisent quelques variantes, notamment pour tenir compte du tritium incorporé à la matière organique des organismes. En effet, le coefficient de dose par ingestion de tritium lié à la matière organique est légèrement supérieur à celui du tritium sous forme d'eau tritiée. D'autres variantes de modélisation sont également développées ; par exemple, certains modèles tiennent compte des proportions respectives d'eau contaminée et d'eau non contaminée utilisées par les végétaux et consommées par les animaux (par exemple, une vache peut brouter de l'herbe contaminée par du tritium mais consommer une eau non contaminée). Toutefois, ces variantes ne conduisent pas à augmenter de façon significative les doses calculées attribuables au tritium rejeté par les

¹ B. Fiévet. Quel est l'impact du tritium sur l'environnement ? Colloque Inter-CLI - 27 avril 2009 - Cherbourg-Octeville. Commissions locales d'Information de la Manche.

² Groupe Radioécologie Nord-Cotentin – Rapport principal, Juillet 2002.

installations nucléaires et conduisent à une augmentation généralement très faible des doses totales calculées pour les rejets de l'ensemble des radionucléides (le tritium ne comptant que pour une faible part de ces doses). En conséquence, l'intérêt de ces variantes est assez limité pour le cadre réglementaire ; à titre d'information, le Groupe Radioécologie Nord-Cotentin² ne les a pas retenues et a supposé pour ses calculs que la totalité du tritium des organismes marins et terrestres est sous forme d'eau tritiée. Toutefois, dans les cas où le tritium représenterait une part importante des doses calculées pour la population du fait des rejets d'un ensemble de radionucléides, il serait souhaitable de tenir compte des processus susceptibles d'augmenter, même légèrement, l'estimation des doses, notamment le transfert de tritium à la matière organique.

2|2| Impact du tritium rejeté dans les effluents gazeux : la voie transcutanée

Outre l'inhalation et l'ingestion, le tritium rejeté dans l'atmosphère peut être à l'origine de l'exposition de la population par une voie spécifique, le passage transcutané.

L'estimation de l'incorporation de tritium par voie transcutanée n'a fait l'objet que d'un nombre réduit de publications.

La publication 30³ de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) estime cette incorporation à 50 % de l'incorporation par inhalation pour un travailleur, l'incorporation de tritium par inhalation étant par ailleurs a priori supérieure pour un travailleur par rapport à une personne du public, le débit respiratoire d'un travailleur étant plus élevé que le débit moyen sur un an d'une personne du public.

La publication 10⁴ du Comité consultatif de la Commission de contrôle de l'énergie atomique du Canada (CCRP) estime que, pour les personnes ayant une activité physique au moment de leur exposition à des vapeurs d'eau tritiée (exposition professionnelle par exemple), l'apport de tritium dans l'organisme par inhalation n'est qu'environ deux fois plus grand que l'apport par voie transcutanée, ce qui est cohérent avec les indications de la CIPR évoquées supra. Par contre, le CCRP estime que, pour les personnes au repos au moment de l'exposition, les apports par ces deux voies sont équivalents.

Sur cette base, lorsque l'inhalation de tritium est une voie d'exposition significative des individus, il est souhaitable de tenir compte de l'incorporation de tritium par voie transcutanée.

3| Conclusion

L'IRSN est régulièrement amené à formuler des avis sur les dossiers de demandes d'autorisation de rejet de tritium présentées par les exploitants des installations nucléaires. Plusieurs questions font l'objet d'un examen approfondi par l'IRSN dans le but de statuer quant au bien-fondé de ces demandes et de proposer, le cas échéant, des limites plus basses et des conditions de gestion et de rejet des effluents tritiés plus contraignantes que les demandes de l'exploitant.

Les calculs d'impact présentés par les exploitants sont examinés et l'IRSN procède à des contre-calculs indépendants : le tritium rejeté est pris en considération au même titre que l'ensemble des autres radionucléides rejetés et l'impact de la totalité des radionucléides rejetés par l'installation, éventuellement par le site, est un paramètre clef de l'avis de l'IRSN sur les demandes de l'exploitant. Toutefois, en tant que de besoin, l'impact de certains radionucléides, dont le tritium, peut être spécifiquement examiné pour porter un avis sur l'optimisation des rejets.

En pratique, l'impact radiologique des rejets de tritium reste faible pour la plupart des installations nucléaires françaises. Les doses calculées sont même pratiquement nulles pour les rejets de tritium en mer (pas d'ingestion d'eau de boisson, pas de transfert aux aliments d'origine terrestre par irrigation).

A titre d'exemple, pour les centrales en bord de rivière, sur la base des calculs présentés par EDF dans ses dossiers et des contre-calculs réalisés par l'IRSN, il apparaît que les doses calculées dues aux rejets de tritium sont généralement de l'ordre de 10 % à 15 % des doses calculées dues aux rejets de l'ensemble des radionucléides dans les effluents liquides des centrales en bord de rivière. Il apparaît également que la fraction des doses calculées pour la population dues aux rejets de tritium gazeux des centrales nucléaires est de l'ordre de 10 % des doses calculées dues aux rejets de l'ensemble des radionucléides rejetés dans l'atmosphère.

De même, pour les rejets réels de l'usine de La Hague, la dose due aux rejets de tritium dans les effluents liquides et gazeux ne dépasse pas 2 % de la dose due aux rejets de l'ensemble des radionucléides rejetés.

³ CIPR

⁴ Comité consultatif de la Commission de contrôle de l'énergie atomique du Canada, Etude de la toxicité et de la dosimétrie du tritium, Rapport préparé par D.K. Myers et J.R. Johnson, CCRP-10, Juillet 1992.

Le Tritium : un risque sous-estimé

Pierre Barbey et David Boilley - Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest (ACRO)
<http://acro.eu.org>

Le Tritium (^3H) ou $[\text{T}]$ est l'isotope radioactif de l'hydrogène $[\text{H}]$. A ce titre, il peut se substituer aux atomes d'hydrogène qui constituent l'un des quatre éléments fondamentaux (avec le carbone, l'azote et l'oxygène) de la matière organique, donc des corps vivants.

Le Tritium rejeté dans l'environnement, sous forme d'eau tritiée $[\text{HTO}]$ ou sous forme de gaz (tritium et méthane), sera incorporé par les espèces vivantes de plusieurs façons :

- par inhalation,
- par transfert cutané,
- par ingestion.

En dehors des expositions professionnelles, c'est la voie ingestion qui est le mode d'exposition nettement dominant pour le public.

L'eau tritiée incorporée par un organisme vivant se comporte de manière identique à l'eau constitutive de cet organisme (un peu plus de 70% chez l'homme à plus de 90% dans certaines espèces végétales et animales) et se répartit dans tout le corps.

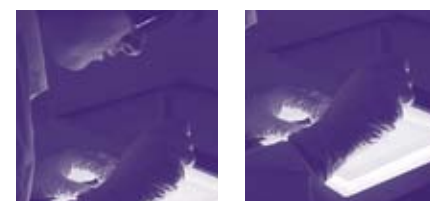
Parmi les espèces végétales, plantes en milieu terrestre et phytoplancton en milieu aquatique, l'activité de photosynthèse conduit à l'incorporation d'eau tritiée $[\text{HTO}]$ pour la synthèse de molécules organiques $[\text{OBT}]^1$.

Ensuite, par ingestion, les espèces vivantes (et l'homme en bout de chaîne alimentaire) incorporent du Tritium sous forme d'eau tritiée mais également sous forme de tritium organique.

1 | Le système de radioprotection

En tant qu'isotope de l'hydrogène, le tritium est bien un élément toxique en raison exclusivement de sa nature radioactive. N'en déplaise à ceux qui, inlassablement, cherchent à le distinguer des autres substances radioactives pour mieux le banaliser. En fait, le débat qui s'est instauré depuis plusieurs années dans une partie de la communauté scientifique viserait plutôt à réévaluer à la hausse le risque radio-induit qui est affecté au Tritium $[\text{RP-152}, 2008]$, $[\text{AGIR}, 2007]$.

Dans le système de radioprotection actuel, le risque radio-induit est construit pour l'essentiel à partir des conséquences observées sur les survivants de Hiroshima et de Nagasaki qui ont subi une exposition externe à des rayonnements (principalement des photons) de façon aiguë. Quelques cohortes de patients et de travailleurs exposés ont permis de préciser le modèle de risque.



Lorsqu'il s'agit d'une contamination interne chronique, le système de radioprotection développé par la CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) vise à quantifier le dépôt d'énergie par le rayonnement émis par les substances radioactives incorporées en le moyennant par tissu ou par organe. Il intègre en outre un coefficient de correction, appelé facteur de pondération (w_R), pour tenir compte de la nature du rayonnement, essentiellement de la densité d'ionisation qu'il produit dans la matière $[\text{CIPR103}, 2007]$. Par analogie (portant sur les doses équivalentes aux tissus ou aux organes), les coefficients de risques radio-induits issus d'Hiroshima-Nagasaki sont appliqués de la même façon aux situations de contaminations internes.

2 | Le risque lié au tritium est sous-estimé

Cette approche simplificatrice ne tient pas compte de l'hétérogénéité, en particulier à l'échelle cellulaire, du dépôt d'énergie produit par les rayonnements bêta du tritium du fait de son faible parcours dans la matière vivante. Ce parcours de l'ordre du micron ($0,6 \mu\text{m}$ en moyenne et $6 \mu\text{m}$ au maximum), nettement inférieur au diamètre moyen d'une cellule, peut conduire à ce qu'une quantité d'énergie importante soit déposée dans l'ADN si l'atome de tritium est localisé au niveau de la chromatine. Cette question est en outre accentuée par une densité d'ionisation élevée due aux bêtas du tritium $[\text{tableau n}^\circ 1]$ comparativement aux rayonnements de référence (gamma du cobalt-60 ou rayons X de 250 kV) censés représenter le rayonnement externe² produit lors des explosions nucléaires.

Tableau n°1 : Dépôt d'énergie par unité de parcours dans la matière

	Bêtas $[\text{^3H}]$	Ray. X (250 kV)	Gammas $[\text{^60Co}]$
Transfert linéique d'énergie ($\text{keV}/\mu\text{m}$)	4,7	1,7	0,22

Il s'agit là, sans doute, d'une des raisons principales qui expliquent la toxicité particulière du tritium car l'efficacité d'altération biologique des radiations est étroitement dépendante de la densité d'ionisation (exprimée par le transfert linéique d'énergie) $[\text{HUNTER}, 2009]$.

En effet, de nombreux travaux scientifiques ont été réalisés pour évaluer les effets biologiques du tritium par comparaison à ceux obtenus à partir des rayonnements de référence. Ils sont très largement concordants pour exprimer, à dose absorbée égale, une radiotoxicité clairement plus élevée du tritium par rapport aux rayonnements de référence. A travers ces expérimentations, les auteurs calculent un coefficient d'efficacité

¹ Organically Bound Tritium ou tritium organiquement lié

² Les radiations gamma subies lors des explosions nucléaires se situent dans des énergies élevées (2 à 5 MeV).

biologique (EBR) qui est le rapport, pour une même dose absorbée, des dégâts biologiques induits par les bêtas du tritium sur ceux induits par les photons (X ou gamma). Ce rapport est souvent voisin de 1,5 à 2 (par comparaison aux rayons X) et de l'ordre de 2 à 4 (par comparaison aux rayons gamma) [LITTLE, 2008]. De tels résultats sont cohérents avec une approche biophysique qui conduit à un EBR théorique de 3,75.

Parmi ces expérimentations, celles qui présentent un intérêt prépondérant sont celles qui étudient des cibles biologiques telles que l'induction de cancers ou des anomalies chromosomiques car elles correspondent aux effets stochastiques. Dans ce cas-là, les EBR servent à construire les facteurs de pondération w_R .

Or, la CIPR a fixé arbitrairement un $w_R = 1$ pour l'ensemble des rayonnements bêta quels qu'ils soient. Pourtant, l'on sait fort bien que l'efficacité biologique peut varier significativement selon l'énergie associée aux particules chargées légères. Straume a montré que l'EBR du Tritium est 10 fois plus élevé que l'EBR d'électrons de 15 MeV [STRAUME, 1995]. Concrètement, de ce seul point de vue du transfert linéique d'énergie, cela signifie que le risque radio-induit dû au tritium est sous-évalué d'au moins un facteur 2 à 4.

Par conséquent, toujours pour ce seul argument évoqué ici, les coefficients de dose par unité d'incorporation (CDUI) établis pour le Tritium [tableau n°2] devraient être corrigés, a minima, par ce même facteur. Ces coefficients permettent de calculer la dose efficace reçue par un individu (en Sv) à partir de la connaissance de l'activité incorporée (en Bq de tritium).

Tableau n°2 : Coefficient de dose efficace engagée par unité incorporée par ingestion (Sv.Bq⁻¹) pour la population (*)

Forme chimique	≤ 1 an	1-2 ans	2-7 ans	7-12 ans	12-17 ans	adulte
Eau tritiée	6,4.10 ⁻¹¹	4,8.10 ⁻¹¹	3,1.10 ⁻¹¹	2,3.10 ⁻¹¹	1,8.10 ⁻¹¹	1,8.10 ⁻¹¹
Tritium organique	1,2.10 ⁻¹⁰	1,2.10 ⁻¹⁰	7,3.10 ⁻¹¹	5,7.10 ⁻¹¹	4,2.10 ⁻¹¹	4,2.10 ⁻¹¹

(*) : Directive 96/29/Euratom du 13 mai 1996

3 | Incorporation de produits organiques tritiés et modèle biocinétique CIPR

D'autres questions relatives à la toxicité du tritium laissent suggérer que la sous-estimation du risque lié à ce radioélément pourrait être plus importante encore.

Le modèle biocinétique pour l'eau tritiée et les composés organiques tritiés est décrit pour le travailleur dans la Publication 78 de la Commission [ICRP78, 1999]. Il est représenté par 2 compartiments représentant l'eau totale du corps (A) et l'ensemble de la matière organique (B). Il suppose que 97% de l'eau tritiée [tableau n°3] est en équilibre avec l'eau du corps et est retenu avec une demi-vie de 10 jours, le restant étant incorporé dans les molécules organiques et retenu avec une demi-vie de 40 jours. Pour les composés organiques du tritium [tableau n°4], 50% de l'activité est retenu avec la période biologique de l'eau libre (10 jours) et 50% avec la période biologique du carbone organique (40 jours).

Tableau n°3 : Données biocinétiques pour l'eau tritiée (HTO) selon la CIPR

Compartiment	Fraction incorporée (%)	Période biologique (jours)
A	97	10
B	3	40

Tableau n°4 : Données biocinétiques pour le Tritium organiquement lié (OBT) selon la CIPR

Compartiment	Fraction incorporée (%)	Période biologique (jours)
A	50	10
B	50	40

Le modèle CIPR est mis en défaut par de récentes expérimentations où des rats ont été nourris avec du poisson prélevé dans la Baie de Cardiff (fort marquage en tritium libre et organique) [HODGSON, 2005]. Le modèle CIPR sous-estimerait donc l'incorporation dans la matière organique et sa rétention dans le corps comme l'indique le tableau suivant :

Tableau n°5 : Données biocinétiques pour le Tritium organiquement lié (OBT) [HODGSON]

Compartiment	Fraction incorporée (%)	Période biologique (jours)
A	70	10
B	30	100

D'autres auteurs, qui proposent un modèle alternatif multicompartimental, considèrent également que le modèle de la CIPR sous-estime la concentration en tritium organique présente dans le corps après incorporation [GALERIU, 2009].

L'ingestion de produits organiques tritiés est un facteur aggravant qui peut être parfois très élevé. Ainsi des auteurs ont pu montrer que la thymidine tritiée est environ 10 000 fois plus radiotoxique que l'eau tritiée. D'autres ont observé que l'arginine tritiée, qui est très rapidement incorporée dans l'embryon de souris, est encore plus radiotoxique pour cet élément (au stade de blastocyste) [MULLER, 1986].

4 | La transmutation du tritium et l'effet isotopique

Deux autres raisons théoriques viennent renforcer les raisons plausibles qui peuvent expliquer l'existence d'un EBR presque toujours supérieurs à 1 avec le tritium.

Tout d'abord, lorsqu'un atome [³H] se désintègre en émettant une particule bêta, il se transforme en [He] (hélium). Pour le tritium organique, cette transmutation conduit à la formation d'un carbone ionisé. Des expérimentations portant sur l'incorporation de bases pyrimidiques³ tritiées dans différents types de cellules ont démontré un rôle mutagène de cette transmutation [TEEBOR, 1984]. Des auteurs utilisant de la thymidine tritiée sur des cellules humaines ont pu établir que 31% des ruptures monocaténaires produites sur l'ADN seraient associées à ce phénomène de transmutation [TISLJAR-LENTULIS, 1983].

³ Base azotée dérivant de la pyrimidine, qui entre dans la composition des nucléotides, des acides nucléiques.

Par ailleurs, la différence de masse atomique entre des isotopes d'une même famille conduit à ce qui est communément appelé un « effet isotopique ». La différence de masse entre le tritium et l'hydrogène (un facteur 3) est susceptible de produire un effet discriminant entre ces deux éléments. Des données scientifiques plus récentes suggèrent une concentration renforcée de tritium au niveau de la couche d'hydratation intimement liée à l'ADN. Bien qu'il ne s'agisse pas de tritium organiquement lié au sens usuel, Baumgartner et collaborateurs ont clairement montré un enrichissement d'eau tritiée liée à des macromolécules (par comparaison à l'eau libre dans la cellule). Cet enrichissement en tritium est d'un facteur 1,4 pour l'eau d'hydratation des protéines et d'un facteur 2 pour l'eau d'hydratation de l'ADN [BAUMGARTNER, 2004].

5 | Une première conclusion

En l'état actuel des connaissances et par précaution, l'ACRO estime que la CIPR devrait dès maintenant réévaluer le risque radio-induit lié au tritium en affectant un facteur de pondération $w_T = 5$ pour le rayonnement bêta de cet isotope.

Certes, le système de radioprotection institué par la CIPR est avant tout un système de gestion du risque radiologique et, à ce titre, il doit limiter la complexification du système. Néanmoins, avec la récente CIPR-103, la Commission n'a pas hésité à modifier les facteurs de pondération pour les neutrons (en adoptant des fonctions continues complexes) et à réduire par un facteur 2,5 le w_T attribué aux protons. Enfin, alors que la CIPR prétend que son système de radioprotection s'appuie sur le principe de précaution, il n'est pas acceptable que la Commission continue à sous-estimer un risque, qui prend une grande proportion sur le plan environnemental, sous prétexte de simplification.

En attendant cette réévaluation, les autorités françaises doivent anticiper l'augmentation très probable du facteur de pondération.

6 | Comportement environnemental

Dans l'environnement, le tritium ne semble pas se comporter comme le prédisent les modèles⁴. De nombreux animaux marins ou de rivières ont des concentrations en tritium qui sont plus fortes que celle dans l'eau environnante. Il n'y a pas d'explication claire de ce phénomène pour le moment. Tout le tritium est-il rejeté sous forme d'eau tritiée ? N'y a-t-il pas des rejets sous autres formes chimiques qui échappent aux contrôles ? Ou, plus directement, peut-il exister un mécanisme de bioaccumulation (terme employé par les autorités anglaises en charge du contrôle de l'environnement) non encore élucidé ?

A notre connaissance, aucune donnée environnementale ne met en évidence le phénomène inverse. Ces observations tendent donc à accentuer l'impact du tritium dans l'environnement et doivent aussi être prises en compte.

7 | Conséquences pour les rejets tritiés

Conformément à l'article 6 de la directive 96/29/Euratom, « la justification des catégories ou types de pratiques existants peut faire l'objet d'une révision chaque fois que des connaissances nouvelles et importantes concernant leur efficacité ou leurs conséquences sont acquises ». La réévaluation en cours au niveau européen de la radiotoxicité du tritium impose donc de revisiter les pratiques concernant les rejets et le stockage des déchets tritiés. En application du principe de précaution, les autorisations de rejet devraient être revues à la baisse. Rappelons que les engagements de la France vis-à-vis de la convention d'OSPAR vont dans le même sens pour les rejets dans l'Atlantique Nord. Ce n'est malheureusement pas la tendance actuelle.

Nous sommes conscients que le tritium peut difficilement être capté et que son stockage pose des problèmes, comme le montre le cas du centre de stockage de la Manche qui contamine encore les nappes phréatiques. Il faut donc viser à réduire sa production en amont. Les demandes récentes d'EDF d'augmenter ses rejets tritiés suite à l'utilisation de nouveaux combustibles à haut taux d'enrichissement, n'ont pas été justifiées.

Aucun bilan environnemental de cette nouvelle pratique n'ayant été présenté, l'ACRO fait sienne la conclusion de l'ANCCLI qui, à l'issue d'un colloque pluraliste sur le sujet, a demandé qu'« **aucune augmentation des rejets de tritium [ne soit permise] tant que les effets liés à une exposition chronique à cet élément ne seront pas mieux connus** ». Elle regrette aussi que des autorisations de rejet à la hausse aient été délivrées alors que les travaux de ces groupes n'étaient pas terminés. Cela viole l'esprit de la convention d'Aarhus qui doit encadrer toute concertation en matière d'environnement.

Il en est de même pour la production de tritium militaire qui n'a jamais été justifiée ni débattue démocratiquement. L'ACRO aimerait connaître les stratégies mises en place pour diminuer cette production dans un contexte international qui tend vers une réduction des arsenaux nucléaires des grandes puissances.

8 | Conclusion

Il y a 10 ans déjà, lors d'un colloque de la SFRP⁵ centré sur le tritium, l'ACRO était intervenue pour demander que soit réévalué le risque associé au tritium notamment en prenant mieux en compte les EBR définis expérimentalement. Nous n'avons pas cessé de porter sur la place publique les nouvelles données de la littérature scientifique et d'interpeller les pouvoirs publics face aux tentatives de banalisation des rejets de tritium dans l'environnement.

L'ACRO continuera inlassablement à réclamer que le risque radio-induit lié au tritium soit revu à la hausse et que toutes les conséquences soient tirées en matière de plans de surveillance environnementale (analyses OBT) et d'évaluation de l'impact sanitaire.

Enfin l'ACRO estime que la question du Tritium mérite que des axes de recherche soient fortement soutenus en particulier dans le domaine de l'épidémiologie (conduire des études d'envergure internationale comme cela a été fait pour le radon), dans celui d'une meilleure connaissance des effets à l'échelle cellulaire et sur la question d'une possible bioaccumulation dans l'environnement.

⁴ Voir la contribution d'A. Guillemette et J. C. Zerbib à ce livre blanc.

⁵ Colloque sur le tritium organisé par la Société Française de Radioprotection. Octobre 1999.

- [AGIR, 2007] Report of AGIR (2007). Review of risks from Tritium.
- [BAUMGARTNER, 2004] Baumgärtner F. and Donhaerl W. Non-exchangeable organically bound tritium (OBT): its real nature. *Anal. Bioanal. Chem.* 379 (2004) 204-209.
- [GALERIU, 2009] Galeriu D., Melintescu A., Beresford N.A., Takeda H. and Crout N.M.J. The dynamic transfer of ^3H and ^{14}C in mammals: a proposed generic model. *Radiat. Environ. Biophys.* 48 (2009) 29-45.
- [HODGSON, 2005] Hodgson A., Scott J.E., Fell T.P. and Harrison J.D. Radiation doses from the consumption of Cardiff Bay flounder containing organically bound tritium (OBT). *J. Radiol. Prot.* 25 (2005) 149-159.
- [HUNTER, 2009] Hunter N. and Muirhead C.R. Review of relative biological effectiveness dependence on linear energy transfer for low-LET radiations. *J. Radiol. Prot.* 29 (2009) 5-21.
- [ICRP78, 1999] ICRP Publication 78 (1999) Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers. *Ann. ICRP* 27(3-4).
- [ICRP103, 2007] ICRP Publication 103 (2007). The 2007 recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *Ann. ICRP* 37(2-4).
- [LITTLE, 2008] Little M.P. and Lambert B.E. Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium. *Radiat. Environ. Biophys.* 47 (2008) 71-93.
- [MULLER, 1986] Müller W.U., Steffer C., Molls M. and Glück L. Radiotoxicity of ^3H -Thymidine and ^3H -Arginine in pre-implantation mouse embryos in vitro. *Radiat. Prot. Dosimetry* 16, 1-2 (1986) 155-158.
- [RP-152, 2008] Radiation protection n°152 (2008). Emerging issues on Tritium and low energy beta emitters.
- [STRAUME, 1995] Straume T. High-energy gamma rays in Hiroshima and Nagasaki : implications for risk and w_R . *Health Phys.* 69 (1995) 954-956.
- [TEEBOR, 1984] Teebor G.W., Frenkel K. and Goldstein M.S. Ionizing radiation and tritium transmutation both cause formation of 5-hydroxymethyl-2'-deoxyuridine in cellular DNA. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 81 (1984) 318-321.
- [TISLJAR-LENTULIS, 1983] Tisljar-Lentulis G., Henneberg P., Feinendegen L.E. and Commerford S.L. The oxygen enhancement for single- and double-strand-breaks induced by tritium incorporated in DNA of cultured human T1 cells. Impact of the transmutation effect. *Radiat. Res.* 94 (1983) 41-50.

L'ANCCLI et le tritium

Conclusions / recommandations - Association Nationale des Comités et Commissions Locales d'Information (ANCCLI) du 10 décembre 2008

1 | Genèse

Suite au débat public sur les options générales en matière de gestion des déchets radioactifs de haute activité et de moyenne activité à vie longue, le Président de la Commission Nationale de Débat Public (CNDP) rapporte dans son bilan qu'il y a « *unanimité pour considérer que l'information et le dialogue doivent être encore et toujours développés, ce qui suppose notamment une expertise plurielle ayant les moyens de jouer pleinement son rôle ; Ils sont la condition de la confiance ; L'information et la participation du public sont un facteur de la sûreté* » (27 janvier 2006).

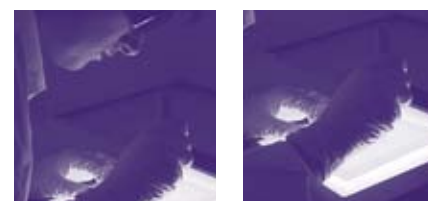
Pour donner suite à ces recommandations, l'ANCCLI a proposé dans son Livre Blanc « Matières et Déchets Radioactifs – Territoires » (23 juin 2006), qu'il soit créé une Commission Nationale Pluraliste Permanente (CNPP), constituée de représentants de la société civile (institutionnels, industriels, élus, acteurs locaux et citoyens), qui exercerait un suivi citoyen autonome, vigilant et permanent. « *Dans l'hypothèse où la création d'une CNPP ne serait pas retenue dans la loi de 2006, l'ANCCLI créera, de sa propre initiative, cette commission avec les acteurs qui souhaitent s'y associer* ».

La loi n'ayant pas retenu cette proposition, l'ANCCLI a donc créé, en son sein, un Groupe Permanent « Matières et Déchets Radioactifs (GPMDR) ». Ce groupe n'a pas vocation à se substituer à la mise en place de la CNPP, dont la représentation serait plus large, mais se constitue plus comme un forum de dialogue entre les CLI.

Ce GPMDR s'est donné comme mission première d'amener les CLI à s'impliquer dans la veille des applications de la loi de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs (28 juin 2006) et a fourni, grâce à l'engagement de ses membres, la preuve qu'il existe un réel besoin d'une structure de débat sur la problématique des déchets.

Dans ce contexte et sur la base de l'article 4 de la loi « déchets » relatif à l'institution d'un programme d'étude et de recherche ayant pour objectif « la mise au point pour 2008 de solutions d'entreposage des déchets contenant du tritium permettant la réduction de leur radioactivité avant leur stockage en surface ou à faible profondeur », le GPMDR s'est emparé de la problématique du Tritium.

Dans le cadre de ses réflexions, le GPMDR a dressé un état des lieux des quantités de tritium naturel et artificiel présentes dans l'environnement, dans le monde et tout particulièrement en France ; examiné les connaissances actuelles et les recherches en cours sur la dangerosité de tritium pour la santé, les modes de traitement des déchets, les rejets des installations nucléaires et leur justification. Le Comité Scientifique de l'ANCCLI a été saisi pour aider le groupe à produire une synthèse de l'état des connaissances sur le Tritium à l'intention des CLI.



Le Groupe a enrichi le site Internet de l'ANCCLI en créant une rubrique spécifique sur ses travaux et où de la documentation sur le sujet est disponible.

Après 18 mois d'échange, le GPMDR a estimé qu'il était temps de faire le point sur ce dossier en l'abordant sous l'angle des déchets et des rejets tritiés dans la mesure où ces deux aspects du tritium sont étroitement liés.

C'est ainsi que les 04 et 05 novembre 2008, l'ANCCLI et son GPMDR, en partenariat avec la CLI de Saclay, ont organisé, pour la première fois un colloque destiné aux acteurs de la société civile – les parties prenantes – en vue de « pouvoir participer à l'élaboration des décisions publiques ayant une incidence sur leur environnement » (Convention d'Aarhus).

Les objectifs de ce colloque : faire le point sur les recherches actuelles et les enjeux relatifs au tritium et permettre aux CLI de s'approprier le débat suffisamment en amont pour pouvoir, le moment venu, peser sur les décisions les concernant.

2 | Le colloque « Le tritium, discret, mais présent partout ! »

Le colloque réunissait des intervenants de tous horizons au niveau national et européen et a permis, grâce à la diversité des points de vue, d'avoir un éclairage pertinent sur ce radioélément, même si l'ANCCLI a regretté l'absence du CEA-DAM qui aurait pu présenter l'avancée de ses travaux sur l'entreposage des déchets tritiés.

Les discussions ont notamment porté sur :

- la nécessité d'approfondir la distinction entre rejets tritiés (rejets des réacteurs nucléaires, de l'usine de retraitement...) et déchets tritiés (déchets militaires pour la plupart).
- l'opposition qui semble exister entre les deux options de prise en charge des déchets tritiés, à savoir, la gestion par dilution (rejets) et la gestion par stockage ou entreposage (concentration des déchets dans un emballage en vue d'un entreposage). Ce débat est en cohérence avec la directive EURATOM 96-29 qui stipule en son article 6 : « La justification des catégories ou des types de pratiques existants peut faire l'objet d'une révision chaque fois que des connaissances nouvelles et importantes concernant leur efficacité ou leurs conséquences sont acquises. ».
- longtemps considéré comme inoffensif, le tritium est largement rejeté dans l'environnement par les installations nucléaires. Des

groupes d'experts : AGIR (groupe pluraliste comprenant les instances officielles et des représentants de la société civile en Grande-Bretagne) et Euratom (les experts de l'article 31 au niveau européen) recommandent que la radiotoxicité de cet élément soit réévaluée.

- la problématique des rejets tritiés dans l'environnement a été largement débattue, montrant qu'il y a là une réelle inquiétude des populations.

L'ANCCLI et les CLI continueront, au sein du GPMDR, à se saisir des dossiers énumérés dans la loi de juin 2006.

Les présentations au colloque sont disponibles sur le site du GPMDR (www.anccli.fr).



3 | Les conclusions du colloque

- Le tritium dans l'environnement : les processus de dispersion (bioaccumulation, bioamplification, bioconcentration),
- L'impact sanitaire du tritium : divers résultats scientifiques suggèrent qu'il faut revoir les données concernant les effets du tritium.
- L'option gestion par rejet : elle doit être réétudiée ainsi que le précise la directive européenne 96-29 en son article 6. Il n'est pas envisageable sans analyses sérieuses de permettre une augmentation des rejets tritiés des divers sites en produisant. De nombreuses incertitudes scientifiques apparaissent. Des recherches scientifiques sont nécessaires pour combler des déficits de connaissances sur les effets du tritium. Comme l'ont souligné certains participants du colloque d'Orsay, la directive européenne REACH impose une démonstration d'innocuité préalable à l'autorisation de mise sur le marché des substances chimiques : le faire pour les substances radioactives serait en cohérence avec les directives.
- L'importance de réduire la production de tritium aux niveaux les plus bas possibles (principe d'optimisation) puisque le stockage ou les rejets posent des problèmes tant sanitaires qu'environnementaux, toujours à l'étude.
- Les conséquences des rejets tritiés sur l'environnement et la santé des populations seront au final à la charge des « citoyens » pour ce qui est du domaine des « réparations »

4 | Recommandations

- Continuer les recherches sur le tritium, en particulier sur les formes organiquement liées ;
- Ne permettre aucune augmentation des rejets de tritium tant que ne seront pas mieux connus les effets à une exposition chronique de ce corps ;
- Faire un suivi de toutes les recherches : la formation de groupes pluralistes tant au niveau national (ASN, IRSN, ANCCLI,...) qu'européen et international est en cours et doit aider dans ce suivi.

5 | Le rôle de l'ANCCLI

- L'ANCCLI demande que la solution proposée par le CEA et instruite par l'ASN, soit soumise à la consultation du public, comme la France s'y est engagée en ratifiant la convention d'Aarhus. Le GPMDR va suivre de près ce dossier.
- Alors qu'il y a des doutes sur l'impact sanitaire du tritium, l'ANCCLI demande l'application du principe de précaution et regrette que plusieurs centrales EDF aient été autorisées à augmenter leurs rejets de tritium dans l'environnement. Elle rappelle aussi qu'en signant les accords de Sintra de la convention OSPAR en 1998, la France s'est engagée à faire tendre vers zéro les concentrations ajoutées en radioéléments dans l'Atlantique Nord.

Annexe 1

Autres sources d'information

Sites

Association canadienne de radioprotection

<http://www.crpa-acrp.ca/fr/news.php>

Commission canadienne de sûreté nucléaire

http://www.cnscc.gc.ca/fr/mediacentre/issues/tritium_letters.cfm

http://www.nuclearsafety.gc.ca/fr/mediacentre/updates/tritium_drinking_water_aug_2009.cfm

http://www.nuclearsafety.gc.ca/fr/readingroom/factsheets/tritium_dose.cfm

http://www.nuclearsafety.gc.ca/fr/readingroom/factsheets/tritium_studies.cfm

Études sur le tritium Normes et recommandations sur le tritium dans l'eau potable (INFO-0766)

http://www.nuclearsafety.gc.ca/fr/readingroom/healthstudies/tritium_environmental_fate_of_tritium_in_the_atmosphere.cfm

http://www.nuclearsafety.gc.ca/fr/readingroom/healthstudies/tritium_health_effects_of_tritium.cfm

http://www.nuclearsafety.gc.ca/fr/readingroom/healthstudies/tritium_evaluation_of_facilities_handling_tritium.cfm

AIEA

Modelling the Environmental Transfer of Tritium and Carbon-14 to Biota and Man

Office fédéral de la santé publique OFSP (Suisse)

<http://www.bag.admin.ch/index.html?lang=fr>

Ontario Drinking Water Advisory Council

http://www.odwac.gov.on.ca/standards_review/tritium/tritium_consultation.htm

Japan Atomic Energy Agency

<http://www.jaea.go.jp/english/news/p06053001/index.shtml>

Japon

Congrès « Tritium 2010 » : <http://tritium2010.nifs.ac.jp/>

Société Française de Radioprotection

Fiche tritium : <http://www.sfrp.asso.fr/spip.php?rubrique28&lang=fr>

Journées Tritium Société Française de Radioprotection 23-24 Septembre

2009 : <http://www.sfrp.asso.fr/spip.php?article299>

Structure d'Echange et d'Information sur Valduc

<http://www.seiva.fr/nostravauxanalyses.htm>

Bibliographie

Distribution of tritium in estuarine waters: the role of organic matter, Andrew Turner, Geoffrey E. Millward, Martin Stemp, *Journal of Environmental Radioactivity* 100 (2009) 890-895

Doses from the consumption of Cardiff Bay flounder containing organically bound tritium, Hodgson A, Scott J E, Fell T P and Harrison J D, *J. Radiol. Prot.* 25 (2005) 149-159

Internal dosimetry and tritium—the ICRP position, Roger Cox, Hans-Georg Menzel, Julian Preston, *J. Radiol. Prot.* 28 (2008) 131-135

The human body retention time of environmental organically bound tritium, Hunt J., Bailey T., Reese A, *J. Radiol. Prot.* 29 (2009) 23-36

Les risques liés aux expositions au tritium sont-ils sous-évalués ? F. Paquet (IRSN), H. Métivier (SFRP), *Radioprotection* Vol. 43 (2008) No. 2

Annexe 2

Liste des réunions et des présentations

Réunion du 5 mai 2008

Lancement du groupe de réflexion « impact »

Réunion du 16 mai 2008

Lancement du groupe de réflexion « défense en profondeur »

Réunion du 6 octobre 2008

Point de vue technique de l'ACRO sur le rapport de surveillance de l'environnement 2006 du site AREVA NC du cap de La Hague Transferts (CEA)

La CIPR : position actuelle du Comité 2 sur le tritium (SFRP)

Analyse critique des données disponibles en tritium dans l'environnement du Nord Cotentin et en Manche (IRSN)

Réunion du 27 octobre 2008

The design basis of detritiation at ITER (ITER)

Retour d'expérience sur la stratégie rejets – déchets pour une installation tritium (CEA)

Origines et inventaires des sources de tritium (AREVA, CEA, EDF, IRSN)

Réunion du 19 janvier 2009

Cell nucleus seeking OBT: a still neglected problem? (W-U Müller)

Effets du tritium in utero – synthèse (CEA)

Le tritium organiquement lié : la vision de l'analyste (CETAMA)

Réunion du 2 février 2009

Compléments sur l'inventaire des sources de Tritium (IRSN)

Utilisation du bore dans les PWR et comparaison avec les BWR (EDF)

Rejet Tritium de l'usine de La Hague (AREVA)

PNGMDR - Les entreposages des déchets tritiés (CEA)

Réunion du 11 mai 2009

Bioaccumulation du tritium dans un biote marin - Observation à partir du tritium mesuré dans les algues brunes *Fucus serratus* (ACRO)

Le devenir du tritium dans l'environnement : Bioconcentration, Bioaccumulation, Bioamplification ? (ANCCLI)

Faut-il réévaluer le risque sanitaire lié au tritium ? (IRSN)

Le tritium dans l'environnement : synthèse critique des connaissances (IRSN)

Réunion du 12 mai 2009

Quand le tritium ne décroît plus dans les nappes phréatiques de La Hague ! (ACRO)

Les déchets de déconstruction du programme de démantèlement des réacteurs arrêtés d'EDF, aspect TRITIUM (EDF)

L'utilisation du bore soluble dans les REP (IRSN)

Réunion du 17 septembre 2009

Spéciation physico-chimique des rejets tritiés d'AREVA NC de La Hague (AREVA)

Effets du tritium in utero (CEA)

Epidémiologie du tritium (IRSN)

Les effets biologiques et sanitaires du tritium : questions d'actualité (ANCCLI)

Présentation de la plate-forme européenne MELODI (CNRS)

Réunion du 23 novembre 2009

Le stockage de déchets radioactifs contenant du tritium : impact sur l'environnement (ANDRA)

Etat des connaissances des effets sur les gonades d'une exposition au tritium : reproduction et effets héréditaires (CEA)

Tritium : limites de rejets et impact (IRSN)

Tritium et convention OSPAR (IRSN)

Réunion du 1er février 2010

Synthèse et recommandations du groupe « impact »

Synthèse et recommandations du groupe « défense en profondeur »

Réunion du 2 avril 2010

Synthèse et recommandations du groupe « impact »

Synthèse et recommandations du groupe « défense en profondeur »

Annexe 3

Liste des participants

Dr. Patrick SMEESTERS	AFCN	président du groupe «impact du tritium»
M. Roland MASSE	AT	président du groupe «défense en profondeur»
M. Marc FOURNIER	ASN/DEU	secrétariat
M. Eric ANSOBORLO	CETAMA	invité
M. Jean-Claude AMIARD	Université de Nantes	
M. Yannick ARIMONE	ANDRA	
M. Dietrich AVERBECK	CNRS	
M. Nicolas BAGLAN	CEA	invité
M. Pierre BARBEY	Université de Caen	
M. François BESNUS	IRSN	
M. David BOILLEY	ACRO	
M. Michel BOURGUIGNON	ASN	
M. Dominique BOUST	IRSN	invité
Dr. Xavier CASTAGNET	SPRA	
Dr. Alain CAZOULAT	SPRA	
M. Paul CHAMBON	ANCCLI	
M. Michel CHARTIER	IRSN	invité
M. Vincent CHRETIEN	EDF	
Dr Didier CLARENCON	SPRA	
Mme Colette CLEMENTE	ASN/DRD	(2009-2010)
Mme Marie-Pierre COMETS	ASN	
M. Philippe CORREZE	AREVA	invité
M. Pierre CORTES	ITER	
M. Patrick DEVIN	AREVA	
Dr. Michel DISERBO	CRSSA	
Mme Isabelle DUBLINEAU	IRSN	invitée
M. David DUPUIS	ASN/DRD	(2008)
Dr Jean-Baptiste FLEUTOT	DSND	
Mme Anne FLURY-HERARD	CEA	

M. Jean-Christophe GARIEL	IRSN	invité
Mme Suzanne GAZAL	ANCCLI	
M. Manfred GLUGLA	ITER	
M. Philippe GUETAT	CEA	groupe «défense en profondeur»
M. André GUILLEMETTE	ACRO	
M. Pierrick JAUNET	ASN/DEU	
M. Antoine JOUAN	ANCCLI - CLI du Gard	
Mme Jeannine LALLEMAND	EDF	
Dr Pierre LAROCHE	SPRA	
M. Dominique LAURIER	IRSN	invité
Mme Laurence LEBARON-JACOBS	CEA	
M. Jacob MARCIANO	IRSN	invité
M. Denis MARO	IRSN	invité
M. Michel MASSON	IRSN	invité
M. Rémi MAXIMILIEN	CEA	
M. Henri METIVIER	SFRP	
Mme Françoise MOULIS	EDF	
Pr. Dr. Wolfgang-U. MULLER	Université d'Essen	invité
Mme Dorothée PAC	AREVA	
Mme Marie-Line PERRIN	ASN/DIS	
M. Thierry PREVOST	AREVA	
M. Alain RANNOU	IRSN	
Mme Malvina RENNESSON	AREVA	
Mme Lina RODRIGUEZ-RODRIGO	ITER	
Mme Chantal RIGAL	ANCCLI	
M. Nicolas SENDECKI	IRSN	invité
Mme Monique SENE	GSIE - ANCCLI	
Mme Françoise SICLET	EDF	
M. Jean-François VALERY	AREVA	

A

ACRO 2, 4, 8, 9, 11, 12, 67, 164, 171, 185, 191, 194, 196, 197, 198, 204, 210, 241, 268, 270, 275, 276, 277

AIEA 8, 61, 66, 92, 98, 101, 119, 136, 153, 181, 217, 218, 222, 223, 224, 233, 254, 256, 274

ANCCLI 2, 4, 9, 12, 43, 185, 186, 204, 227, 241, 251, 259, 256, 263, 267, 270, 272, 273, 275, 276, 277

ANDRA 2, 4, 12, 34, 35, 44, 111, 136, 154, 155, 156, 157, 162, 275, 276

AREVA 2, 4, 7, 8, 9, 12, 27, 34, 37, 43, 49, 50, 54, 111, 125, 126, 127, 128, 129, 130, 131, 132, 133, 135, 136, 155, 157, 159, 160, 162, 185, 191, 192, 193, 194, 195, 196, 197, 198, 200, 201, 202, 203, 204, 205, 206, 207, 208, 209, 210, 231, 235, 236, 275, 276, 277

B

Bioaccumulation 2, 7, 8, 14, 44, 46, 47, 73, 79, 81, 88, 92, 94, 101, 174, 186, 187, 188, 189, 190, 191, 192, 194, 195, 196, 197, 198, 204, 210, 227, 232, 234, 235, 236, 238, 239, 253, 254, 270, 273

Bioamplification 7, 46, 47, 187, 189, 232, 275

Bioconcentration 7, 8, 47, 187, 190, 232, 233, 237, 257, 275

C

Cardiff 6, 7, 8, 10, 33, 44, 80, 91, 187, 188, 190, 191, 192, 194, 195, 196, 197, 198, 204, 205, 235, 257, 259, 260, 261, 267, 264, 269, 271, 273, 274

CEA 2, 4, 8, 10, 12, 23, 27, 31, 32, 33, 35, 38, 41, 43, 44, 51, 52, 53, 54, 56, 74, 86, 87, 91, 111, 122, 126, 133, 134, 149, 153, 154, 155, 156, 174, 184, 185, 198, 207, 210, 211, 212, 213, 214, 215, 216, 217, 260, 272, 273, 275, 276, 277

CETAMA 8, 62, 173, 174, 175, 178, 181, 182, 183, 184, 204, 210, 275, 276

CIPR 5, 9, 119, 174, 242, 243, 253, 254, 256, 261, 262, 263, 264, 265, 266, 267, 270, 272, 273, 275

D

Détritiation 2, 4, 11, 12, 22, 32, 35, 36, 38, 39, 40, 41, 43, 111, 119, 132, 134, 137, 138, 139, 140, 141, 142, 143, 144, 145, 146, 147, 148, 149, 152, 153, 154, 214

E

EBR 7, 9, 206, 237, 238, 239, 249, 255, 259, 262, 263, 264, 265, 273

EDF 2, 4, 8, 11, 12, 14, 16, 17, 18, 19, 20, 23, 33, 36, 43, 48, 49, 65, 73, 87, 91, 101, 111, 112, 113, 114, 115, 120, 121, 122, 123, 124, 127, 155, 187, 190, 191, 192, 195, 196, 197, 198, 204, 210, 266, 267, 270, 273, 275, 276, 277

Embryon 5, 10, 102, 243, 244, 247, 248, 249, 262, 269

EURATOM 9, 203, 222, 272

F

Facteur de concentration 37, 39, 47, 79, 80, 90, 92, 109, 134, 135, 136, 198

Fœtus 5, 10, 243, 244, 253, 262

H

Héréditaire 5, 9, 10, 251, 253, 257, 275

I

IRSN 2, 4, 7, 8, 9, 13, 14, 35, 44, 45, 48, 49, 50, 52, 57, 62, 63, 65, 66, 67, 70, 74, 75, 78, 80, 91, 92, 95, 97, 103, 114, 130, 136, 181, 182, 185, 191, 192, 193, 195, 196, 197, 198, 199, 203, 204, 205, 209, 210, 223, 227, 228, 229, 230, 231, 232, 233, 234, 235, 236, 237, 238, 239, 241, 256, 257, 258, 263, 265, 266, 267, 273, 274, 275, 276, 277

ITER 2, 4, 12, 14, 33, 35, 36, 39, 43, 45, 56, 57, 111, 116, 117, 118, 119, 134, 135, 137, 138, 139, 140, 141, 142, 143, 144, 145, 146, 155, 156, 174, 184, 218, 222, 227, 256, 262, 275, 276, 277

L

La Hague 4, 7, 8, 11, 12, 15, 27, 28, 29, 30, 33, 34, 36, 37, 42, 43, 49, 50, 51, 66, 74, 78, 79, 80, 81, 91, 97, 157, 162, 191, 192, 193, 194, 195, 196, 198, 207, 231, 266, 267, 275

M

Manche 7, 11, 12, 34, 44, 50, 51, 74, 77, 78, 79, 81, 91, 97, 115, 157, 158, 159, 165, 171, 191, 192, 195, 196, 197, 199, 204, 205, 210, 231, 235, 266, 270

Marcoule 12, 23, 31, 33, 35, 43, 52, 53, 54, 66, 67, 73, 87, 155, 156, 231, 258

Métrologie 3, 4, 8, 20, 57, 60, 61, 173, 174, 175, 176, 177, 178, 179, 180, 181, 182, 183, 184, 200

Morvilliers 12, 34

O

OSPAR 11, 115, 185, 199, 205, 207, 210, 223, 224, 225, 226, 270, 273, 275

P

PNGMDR 12, 35, 155, 275

R

Rémanence 6, 7, 8, 10, 44, 46, 47, 73, 79, 80, 83, 86, 87, 88, 90, 92, 187, 188, 204, 229, 232, 233, 234, 235, 236, 237, 238, 239, 252

S

Sellafield 2, 6, 7, 15, 28, 29, 30, 43, 50, 51, 74, 80, 185, 187, 188, 191, 192, 193, 194, 195, 197, 198, 204, 205, 210, 231, 235, 257, 263

T

THORP 28, 30, 201

V

Valduc 8, 11, 12, 31, 32, 33, 35, 41, 43, 51, 52, 66, 73, 87, 111, 147, 148, 149, 150, 151, 152, 154, 155, 156, 185, 212, 213, 214, 216, 231, 274

W

w_R 5, 7, 9, 11, 252, 253, 257, 261, 262, 268, 269, 271

Wylfa 7, 191, 194, 195

Context

Tritium is a hydrogen isotope that is a low-energy beta emitter (mean energy 5.7 keV). The most commonly-found form in the biosphere is tritiated water and the dominant exposure route is ingestion. The radiotoxicity of tritium is low. The overall impact of tritium releases in France is also low, with an annual effective dose of roughly one μSv or less for the reference groups.

Radioactive releases in the environment around civilian nuclear facilities have significantly decreased over the last few decades, with the exception of tritium. Discharges of this element are forecast to increase due to expected changes in the fuel management methods used by the NPP, and also due to new tritium-emitting facilities, including new power plants that are to be built, and the ITER project.

In late 2007, papers published in the UK (RIFE 11 report, study by the HPA's Advisory Group on Ionising Radiation (AGIR)) raised questions as to the behaviour of tritium in the environment, in particular focusing on potential accumulation in organisms of organically bound tritium (OBT) from tritium released into the environment and on methods for assessing the biological impact of tritium in humans.

Given this context, ASN wanted to get a clear analysis of the existing studies into the issue and in early 2008 decided to establish two broad working groups, chaired by Dr Patrick Smeesters of the Belgian Federal Agency for Nuclear Control (AFCN) and Mr Roland Masse of the *Académie des technologies*. The groups were formed of experts (from the CEA, CNRS, GSIEN, Institut Curie, IRSN, universities and European Commission "Article 31" experts), representatives of operators (ANDRA, AREVA, CEA, EDF and ITER), associations (ANCCLI, ACRO and CLI) and safety authorities (ASN, DSND). Their findings and recommendations were submitted in early April 2010.

The ASN is pleased with the high quality of the work and the large bibliography provided, which have led to the recommendations issued at the end of each group's summary.

The studies highlight the small impact that tritium releases have in France. However, they do also show the need to carry out further study and research in order to supplement current data and knowledge on the behaviour of tritium in the environment.

The ASN has drawn up its action plan on the basis of the recommendations made by the two working groups. It also hopes that research bodies take into account the requests made by the working groups, as described in the summary of work and recommendations.

ASN Position Statement

Tritium is a hydrogen isotope that is a low-energy beta emitter (mean energy 5.7 keV). The most commonly-found form in the biosphere is tritiated water and the dominant exposure route is ingestion. The radiotoxicity of tritium is low. The overall impact of tritium releases in France is also low, with an annual effective dose of roughly one μSv or less for the reference groups.

Radioactive releases in the environment around civilian nuclear facilities have significantly decreased over the last few decades, with the exception of tritium. Discharges of this element are forecast to increase due to expected changes in the fuel management methods used by the NPP, and also due to new tritium-emitting facilities, including new power plants that are to be built, and the ITER project.

In late 2007, papers published in the UK (RIFE 11 report, study by the HPA's Advisory Group on Ionising Radiation (AGIR)) raised questions as to the behaviour of tritium in the environment, in particular focusing on potential accumulation in organisms of organically bound tritium (OBT) from tritium released into the environment and on methods for assessing the biological impact of tritium in humans.

Given this context, ASN wanted to get a clear analysis of the existing studies into the issue and in early 2008 decided to establish two broad working groups, chaired by Dr Patrick Smeesters of the Belgian Federal Agency for Nuclear Control (AFCN) and Mr Roland Masse of the *Académie des technologies*. The groups were formed of experts (from the CEA, CNRS, GSIEN, Institut Curie, IRSN, universities and European Commission "Article 31" experts), representatives of operators (ANDRA, AREVA, CEA, EDF and ITER), associations (ANCCLI, ACRO and CLI) and safety authorities (ASN, DSND). Their findings and recommendations were submitted in early April 2010.

The ASN is pleased with the high quality of the work and the large bibliography provided, which have led to the recommendations issued at the end of each group's summary.

The studies highlight the small impact that tritium releases have in France. However, they do also show the need to carry out further study and research in order to supplement current data and knowledge on the behaviour of tritium in the environment.

The ASN has drawn up the following action plan on the basis of the recommendations made by the two working groups. It also hopes that research bodies take into account the requests made by the working groups, as described below.

1 ASN action plan

1.1 Measurements

There is currently no standardised measurement protocol for the various physico-chemical forms of tritium, in particular the various organic forms of tritium (exchangeable and non-exchangeable). The fact that there is no standardised method makes it difficult to interpret existing studies and data. The CEA's CETAMA (commission for the establishment of analysis methods) has started work to define shared and recognised measurement protocols. In the ASN's view, this work:

- must lead to the production of a guide to the measurement of organically bound tritium;
- is a vital first step prior to launching further studies.

1.2 Control of discharges

It is currently felt to be unrealistic to detritiate discharges from nuclear reactors and the La Hague fuel reprocessing plant at an acceptable cost using the best technologies currently available. In addition, detritiation would only have a limited effect on the radiological impact from these facilities. Given the increase observed in tritium discharges from civilian nuclear facilities and the absence of a detritiation method, the ASN, as part of the development of defence in depth, considers that:

- publishing the quantities discharged for each facility on an annual basis will ensure a long-term, reliable inventory of sources of tritium production. The public should be regularly and specifically informed of this inventory of tritium discharges by nuclear operators;
- accounting for discharges from all facilities should continue to be managed in all circumstances, as is the case today;
- a “technology watch” should be set up with respect to detritiation technologies.

1.3 Environmental monitoring

Tritium monitoring in the environment and throughout the food chain must be supplemented as follows:

- measurements performed must take into account the physico-chemical forms present. The ASN will consequently ask operators to characterise the physico-chemical forms of tritium in the discharges, particularly with regard to any possible organic precursors (small tritiated organic molecules);
- sampling plans in the different compartments of the environment must be undisputed and shared. In particular, the choice of animal and plant species to be measured must be reviewed in order to remove any species bias.

1.4 Impact assessment

Some studies mention the potential for underestimating the relative biological effectiveness (RBE) of tritium radiation. The ASN will ask the ICRP to review the value of the tritium weighting factor (w_R) used in calculating effective doses. Even before the ICRP’s response is known, the ASN will ask operators to supplement the radiological impact studies for their projects with a critical study in which a variant using a tritium weighting factor (w_R) of two is included.

2 Research themes

Current knowledge about the biological effects of tritium is in some areas rather fragmentary. The following topics should be investigated further by research bodies in order to answer all the questions:

- Harmonisation of dose assessment methods according to the physico-chemical form of the tritium, contamination pathway and length of exposure;
- Studies into the effects of tritium exposure on embryos and foetuses;
- Investigation of new approaches to the potential induction of hereditary effects.

In most cases, this research will require international cooperation.

Finally, the ASN believes that all stakeholders must continue to think about and discuss these issues and to this end suggests the establishment of a supervisory committee to oversee the actions undertaken following the recommendations of the working groups.

What is Tritium ?

Tritium (^3H) is a radioactive isotope of hydrogen, whose specific activity is 358 TBq.g⁻¹. Only tiny proportions of ^3H are in a natural state – there is approximately 1 tritium atom for every 10^{18} hydrogen atoms. Every year, approximately 70,000 TBq (0.2 kg) of tritium is produced through interactions between cosmic radiation and various atmospheric components. The radioactive half-life of tritium is 12.3 years and the total natural tritium inventory is estimated to be 1,300 PBq¹ (3.5 kg).

Tritium exists in various different chemical forms: tritiated water (HTO), tritium gas (HT) and organically bound tritium (OBT).

Tritium is a low-energy beta emitter (mean energy 5.7 keV) and is generally considered to be an element with low radiotoxicity. It follows the hydrogen cycle and is diluted within it. The most commonly-found form in the biosphere is tritiated water, whose biological half-life following ingestion is estimated to be 10 days in an adult. The most common tritium exposure route is ingestion. An annual dose of approximately 0.01 μSv is caused by exposure to naturally occurring ^3H .

¹ Main multiples of units used herein:
10³ kilo k; 10⁶ mega M; 10⁹ giga G; 10¹² tera T; 10¹⁵ peta P; 10¹⁸ exa E

TRITIUM WORKING GROUPS Objectives and approach

Dr Patrick Smeesters, Chairman of the “Tritium Impact” group

Mr Roland Masse, Chairman of the “Tritium: Defence in Depth” group

In 2008, the French Nuclear Safety Authority (ASN) decided to set up two working groups to review current scientific knowledge about the environmental and health impact of tritium (“Tritium Impact” group) and to review the sources and impact of tritium (“Tritium: Defence in Depth” group) and to issue recommendations, where necessary.

From the very outset, the desire for a pluralistic approach was at the heart of the composition of these groups. They are broadly made up of French stakeholders – authorities, expert bodies, research organisations, operators and civil society groups. All these bodies had the opportunity to express their opinions through a presentation and discussions and to issue a written text, which is reproduced in full in this white book. The texts express the point of view of their authors only. The summaries that follow set forth the main points discussed and present the various points of view. If there was disagreement on any point, this is stated. The summaries are concluded with a series of recommendations from the working groups.

The specific brief the groups received was to explore the following topics:

- the potential for tritium accumulation along the food chain and whether there is a need to reassess the health effects of beta radiation from tritium (“Impact” group),
- consequences of the future increase in tritium discharges, and industrial solutions for tritium separation and sequestration from liquid or gaseous discharges (“Defence in Depth” group).

Summary of work and recommendations by the “Tritium Impact” working group

Dr Patrick Smeesters, Chairman.

1 Background to the group’s work

Tritium can be naturally occurring or anthropogenic. It is produced in the form of tritiated hydrogen, tritiated water or tritiated organic molecules. Oxidation converts tritium gas to tritiated water which then joins the water cycle. Since hydrogen is a major constituent element in living matter (along with carbon, oxygen and nitrogen), the tritium can be taken up into organic molecules within cells through processes such as photosynthesis or, in animals, the biosynthesis of molecules in cells or by hydrogen exchanges with the surrounding environment. The differences in bonding forces with the organic matter lead to the definition of two sub-fractions of organically bound tritium (OBT): exchangeable OBT (exchangeable with hydrogen in cell water) and non-exchangeable OBT (more specifically, tritium bound to carbon). The exchange processes can be slowed or even stopped after the death of an organism, causing the organic molecules to remain for a certain time in the soil or sediments. Tritium is a low-energy beta emitter and is generally considered to be an element with low radiotoxicity. Tritium ingested in organic form in food is approximately three times more radiotoxic than tritiated water (dose coefficient per unit of activity ingested is approximately three times higher). This is related to the biological (elimination) half-life.

Tritium has been making the news again over the last few years. Firstly, high concentrations of tritium in organic forms have been unexpectedly observed in some marine species (flat fish, crustaceans and molluscs) in Cardiff Bay, an area which has seen industrial discharge of tritium-marked biological molecules. Analogous observations, but somewhat less marked, were also found off Sellafield, an area in which industrial discharges should theoretically be limited to tritiated water. These observations raise the issue of potential tritium accumulation along the marine food chain. Secondly, from a health perspective, recent summary reports (AGIR¹, Article 31²) have highlighted various difficulties and/or uncertainties in assessing the effects of tritium exposure. Issues include the consequences of the highly heterogeneous dose distribution delivered by tritium, particularly when incorporated into DNA or histones, the uncertainties related to quality factors and the RBE (relative biological effectiveness), the value of tritium weighting factor W_R (a proposal has been made to increase the factor to 2), the lack of data on the effects of chronic exposure or the spread of results when dealing with tritiated organic molecules, with significant variation depending on molecule type and the biological effect analysed.

The ASN’s aim in setting up this working group was to examine current knowledge on all these issues.

2 The issue of bioaccumulation

2.1 Semantic clarification

As is often the case in meetings, regardless of the make-up and expertise of the groups, many discussions stem from the fact that different people understand words differently. It was important, therefore, to agree on the meaning of the terms used.

Bioconcentration means the presence of substances in an organism (e.g. aquatic organism) at a higher or lower concentration than the concentration measured in its environment (e.g. water) at the same time. The bioconcentration factor is simply the ratio between contaminant concentration in the living organism (or one of its organs or tissues) and the concentration of the same substance in the organism’s environment. Bioconcentration factors may thus be greater than, equal to or less than 1. Since bioconcentration factors are often defined in the laboratory, they *do not* take into consideration transmission up the trophic levels of the food chain. Some writers, including the authors of this report, use the terms bioconcentration and bioconcentration factor with a general and purely descriptive meaning to refer to the *increased* tritium

¹ Health Protection Agency, Review of Risks from Tritium, Report of the Independent Advisory Group on Ionizing Radiation, November 2007

² European Commission, EU Scientific Seminar 2007 “Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters, Radiation Protection No 152, Luxembourg, 2008

concentrations observed in living organisms than in their environment, without in any way indicating the exact nature of the contamination source, the time at which such contamination occurred or the underlying biological mechanisms. Due prudence should be taken in interpreting the concentration factors.

The term *bioaccumulation* is often used with the same general meaning as bioconcentration. The French General commission for terminology and neologisms³ describes bioaccumulation as a “process by which a pollutant present in a biotope penetrates or accumulates in some or all of a living organism and can become harmful; by extension, the result of this process.” In the strict sense of the word, bioaccumulation results from the gradual accumulation of a contaminant or toxic substance in an organism, from *diverse sources, including* the atmosphere, water and *food*, until an equilibrium is reached between accumulation and excretion of the substance⁴, with a concentration in the organism that is greater than that in the contamination sources. If this phenomenon is reproduced at each trophic level (with a cumulative increase in concentration of the substance as it moves up the food chain), the term used is *bioamplification*. The opposite process leads to dilution.

Finally, if the living organism was exposed to higher environmental concentrations in the past than in the present, said past contamination may remain in some of its tissue (*remanence*), leading to an apparent imbalance with regard to the present lower concentrations of the contaminant in the environment. This phenomenon occurs when a substance fixes in the organism at a concentration that is lower than or equal to that of the original source, and stays there for a period whose length will depend on the speed at which the substance is excreted. Remanence can also be observed in abiotic environments (soils or sediments) when physico-chemical processes cause a substance to be fixed in the environment long term.

2.2 Observations and interpretations

The presentations focused on observations carried out both in marine environments (Cardiff Bay, Sellafield, La Hague) and in terrestrial environments.

- In the case of the plant producing labelled molecules in Cardiff, a clear example of tritium bioconcentration was observed. The hypothesis concerning bioaccumulation/bioamplification applies if the tritium comes from tritiated organic molecules.

The tritium content found as free tritium (HTO) and organically bound tritium (OBT) in marine fauna varies by factors between 1,000 and 10,000 with respect to the concentrations found as HTO in the sea water

- For the Sellafield site (fuel reprocessing facility managed by BNGL British Nuclear Group Sellafield Limited, which discharges tritiated water), the tritium content found as free tritium (HTO) or organically bound tritium (OBT) in marine fauna (fish, crustaceans and molluscs) varies by a factor of 10 with respect to the concentrations found as HTO in the sea water with 1 to 2 years hysteresis (time lag) between the maximum discharge values and the maximum tritium values in molluscs and flat fish. These observations were interpreted in different ways by various members of the working group.

Some consider that the abnormally high concentrations measured in fish near Sellafield may result either from remanence in sediment labelling following previously large discharges or from the existence of tritiated organic molecules in the same water outflow.

Others consider that this is a case of bioaccumulation which is related to the discharge of *tritiated water*. According to proponents of this view, the hypothesis of marine currents carrying tritium-labelled organic molecules discharged by the Cardiff radiochemical plant is refuted by the fact that analysis carried out near the Wylfa nuclear power plant (NPP), on the west coast of the UK *between* Cardiff and Sellafield did not find any detectable presence of tritium in the marine fauna.

³ Journal Officiel de la République française, Avis et Communications, 4 February 2010

⁴ IRSN, “Le tritium dans l’environnement”, Report DEI 2009-05

Other members of the group felt they did not have enough information to form a view.

- For the La Hague site (fuel reprocessing facility run by AREVA NC, discharging tritiated water), the Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety (IRSN) considers that the research into tritium in the environment around La Hague (joint IRSN-AREVA campaigns) do not show any tritium bioaccumulation / bioconcentration. It should be noted that values for tritium content found as HTO in the sea water around the Sellafield outflows in the Irish Sea and around the La Hague outflows in the Channel are substantially similar.

The French Association for the control of radioactivity in the West (ACRO) reports that bioconcentration (by a factor between 2 and 7) was found in an older joint EDF-IRSN study (from the period 1981-1985) in a small number of available mollusc, crustacean and fish samples. ARCO highlights the fact that measurements performed on marine organisms in Cardiff Bay suggest that algae are a poor indicator for monitoring tritium contamination in marine fauna, since tritium concentrations were significantly higher (by a factor of over 10) in fish than in algae. Its position is that the choices made by IRSN and AREVA to take measurements in algae for monitoring purposes is not the most appropriate method for identifying concentration phenomena in marine organisms. ACRO also points to the very limited number of measurements taken around La Hague between 2000 and 2009 on edible marine produce (flat fish, crustaceans, molluscs etc.).

- With regard to the terrestrial environment, the French Atomic Energy Commission (CEA) presented the mechanisms by which tritiated water is incorporated into plants, based on work performed by the International Atomic Energy Agency. The CEA also reported the results of monitoring measurements performed at the Valduc site by the CEA and, in parallel but independently, by SEIVA, a local association. The levels of radioactivity in water produced in combustion of organic plant matter were found to be between the activity in airborne water vapour and the activity in groundwater. In the CEA's view, these results do not reveal any phenomenon of concentration in the organic matter. According to the CEA, the IAEA calculations could be excessively conservative, by overestimating the free water concentration in plants.
- Finally, high concentrations of organic tritium have been measured in the sediment of water courses affected by discharges from the watchmaking industry, with the organically bound tritium (OBT) content varying with respect to HTO content in the river water by factors of between 1,000 and 10,000.

By way of conclusion, the group considers that the only way to clear up doubts, assess the effect of the various factors at stake, in particular regarding the distribution of tritium in the different compartments (including organic matter in sediment) and to better define the free and organically-bound tritium components in living species is to use appropriate environmental measurement campaigns, with a scientific approach. In the marine environment, these campaigns must focus on a large enough number of edible marine produce samples from various trophic levels (flat fish, crustaceans, molluscs etc.).

Some old publications drawing on environmental data (from the 1970s and 1980s) suggest that tritium could bioamplify in some aquatic trophic chains and that the nutritional pathway is predominant with respect to the direct pathway (water). Research has since become rather rare on this subject.

International studies were recently analysed in a summary report by the IAEA (EMRAS programme 2006-2009) and a calculation model has been proposed (TRS No. 472 and Tecdoc No. 1616). These models now explicitly take into account tritiated organic matter formed from tritiated water (by tritium-labelling food), leading to no increase in concentration at higher trophic levels. However this does not prejudice any transfers and incorporation following the discharge of specific tritiated organic molecules.

Summary report IRSN DEI 2009-05 states that “on the basis of currently available knowledge and with “normal” environmental activities, no phenomenon has been identified as liable to cause significant “bioaccumulation” over the long term and no measurement has pointed to this.” The same report does however mention that “for animal organisms, there is *little data* with respect to the complexity of the issue (number of processes involved, interactions and variability according to species, age and diet)”.

The group wishes to highlight the still fragmentary nature of current knowledge on remanence and on tritium behaviour in sediment, and the need to use targeted multidisciplinary studies with rigorous protocols to provide experimental verification of the hypotheses put forward in older studies, in particular regarding the possible influence of the activity of microorganisms in aquatic sediments when organic tritium is remobilised in aquatic animal organisms. In general, the scientific data regarding the conversion of tritiated water into organic tritium along the food chain should be enhanced. Reliable quantitative estimates are required.

3 Measurements

In discussing tritium, it is essential to state what form it is in (HTO, HT, OBT) and when talking about OBT, it must be clearly specified whether we are talking about the food chain or a molecule that has been labelled for research purposes.

One of the reasons for divergences in the measurement results and in the interpretation thereof comes from difficulties related to metrology and the representative nature of measurements and the lack of a standardised protocol. Methodological clarification is required in order to be able to *compare* environmental tritium measurements.

The *Commission d'ETablisement des Méthodes d'Analyse* (CETAMA), a French working group whose role is to improve the quality of measurements by organising collaborations between laboratories, has done some review work on tritium measurements. In practice, routine environmental monitoring in France currently only focuses on measurements of free tritium (HTO). CETAMA is now working to validate measurement methods for total organically bound tritium (intercomparison exercise 2009-2010). Measurements of non-exchangeable OBT (NE-OBT) are unlikely to be validated until at least 5 years from now. This type of routine measurement still raises metrological problems (the E-OBT and NE-OBT separation test is still unreliable, and analysis takes several days) and unanimous agreement has not been reached. In the opinion of CETAMA, further research is required to improve this measurement in order to better understand the various transfer factors in the environment.

The working group agreed on the need to continue this work to validate and standardise measurement and sampling methods and protocols (“to be sure of what is measured”), and that this work should be carried out within an international framework.

3.1 Nature of releases

There is another open question – are there sources of tritium releases in organic form other than those from industries that synthetically create labelled molecules?

The aforementioned IRSN report highlights the gaps that exist in knowledge regarding the presence of labelled molecules with high levels of specific activity, their behaviour and the consequences in terms of tritium accumulation. The IRSN feels that a key priority is to carry out metrology studies into the various physico-chemical forms (speciation) in which organic tritium is liable to affect humans.

For its part, AREVA considers that after more than 10 years operating with solvent in its plants, no tritium transfer has been observed from tritiated zones to non-tritiated zones via the solvent. It further concludes, on the basis of concentration factors observed in algae, molluscs, crustaceans and fish, that the chemical form of tritium discharges is principally HTO.

Given the major diversity of tritiated organic molecules, the group agrees on the need for caution in conclusions and extrapolations and on the need to characterise the chemical speciation of discharges from potentially relevant sites.

4 Health effects of tritium

4.1 Relevance of “mean organ dose”

Should the effects of beta radiation from tritium be reassessed?

This question is raised by the fact that the tritium isotope has certain specific features. The electron path is very short (less than the diameter of a cell and even of a cell nucleus) and the ionisation density is high, which can cause cluster damage to DNA if the tritiated molecules get into the cell nucleus. Two further phenomena contribute to locally enhancing the effects of tritium – its *in situ* transmutation into helium and enrichment of water in the DNA hydration shell, converting it to tritiated water (referred to as “buried tritium” or the “isotope effect”). All these physico-chemical effects cause lesions, which can in turn lead to DNA mutations. Although the dose distribution is relatively homogenous when the tritium takes the form of tritiated water, it is *heterogeneous* when it is incorporated in DNA or histones. The issue of the relevance of the *mean organ dose* concept as a risk indicator therefore arises. In other words, doses calculated according to the conventional method (using the ICRP’s Sv/Bq conversion factors) could lead to an incorrect estimate of the risk.

In comparing the studies on the biological and health effects, it would be useful to harmonise the methods used to estimate the dose at different scales (cells and organs), according to the form of the tritium, the exposure pathway, the length of exposure and the time before analysis.

Further research into the biological effectiveness of tritium, in particular during various stages of pregnancy, is required in order to clear up these uncertainties and gaps in knowledge.

In recent report⁵, the IRSN stated that “the dosimetric approach to risk is deemed to be robust and lists tritium as one of the least radiotoxic radionuclides,” but nevertheless suggested that “data is lacking on the metabolism and biological effects associated with organic tritium in situations of environmental exposure” and that experimental radio-biological studies should be carried out on various forms of OBT, using a specially adapted technical set-up, in the context of Europe-wide cooperation.

The group agrees on the need to use up-to-date methods to gather further knowledge on the effects of tritium, in order to comprehensively characterise the physico-chemical forms used (covering a concentration scale that would include industrial discharges) and the biological mechanisms at work, focusing not only on aspects relating to carcinogenesis, and looking at age at the time of exposure and at differences between accident-related and chronic exposure.

4.2 W_R and RBE

For reference, the radiation weighting factor (W_R) is used in health physics to take into account the effect of radiation *type* in inducing long-term stochastic effects such as *cancer* or hereditary effects. Opinions were divided within the group with regard to the need to increase the value for tritium (currently 1).

In opposition to the findings of the 2007 AGIR report in the UK and the EURATOM treaty “Article 31 experts” (cf. 2007 Scientific Seminar), the ICRP recently confirmed its choice of a radiation weighting factor of 1 for tritium and low-energy beta emitters, taking into account on the one hand the uncertainties around the issue and on the other hand, purely *forward-looking* objectives for the radiation protection system and the priority to be placed on optimisation and dose constraints.

The IRSN is of the opinion that the RBE of tritium for stochastic effects, on which the weighting factor W_R is based, is closer to 2 than 1, but considers that choosing a weighting factor W_R of 2 rather than 1 would only have a minor significance in routine situations and should only be used in assessing individual risks. This opinion is not shared by the associations ACRO and ANCLI, which are arguing for a weighting factor of 5 for the sake of precaution. No consensus was reached on this issue within the group.

4.3 Epidemiological studies

⁵ IRSN, “Eléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium”, 2009

A literature review shows that studies on exposed workers reveal that risk of cancer is not increased. However, the studies are limited in their robustness due to the insufficient statistical power and/or lack of information on tritium dose. It should be noted that the tritium doses logged were of the order of ten mSv, which implies that very large cohorts would be needed to demonstrate a statistically significant difference between the exposed group and control group. A coordinated international approach based on standardised dosimetric assessments would be required in order to make progress in this field. Within France, a vital first step would be to set up a tritium database to enable tritium to be taken into account in epidemiological studies.

Furthermore, there have been very few studies into the effects of tritium on the population. The studies that do exist are geographical and not very informative. In general terms, international multi-centre studies would be the only potential way to achieve statistical power that is large enough to offer a relevant response to the epidemiological questions. For populations living close to nuclear facilities, the issue of statistical power in the epidemiological studies is more acute when the doses are lower. The issue of the epidemiological *detectability* of tritium risk is raised and this highlights the potentially relevant role that molecular studies with biomarkers could play. Currently, the existing epidemiological studies on tritium in populations have been shown to be of no practical relevance. This does not mean that epidemiological monitoring is unnecessary – it is essential, as for any site posing an industrial hazard.

The group agrees on the importance of assessing the *feasibility* of epidemiological studies in French workers, since it would be useful to gather data on tritium exposure and to process this data in a coordinated manner alongside other ongoing studies around the world.

4.4 Hereditary effects

No increase in hereditary effects have been observed to date in the human race, either in the descendents of people exposed to radiations (Hiroshima and Nagasaki survivors; radiation-treated patients or workers exposed to ionising radiation) or in regions with high natural background radioactivity.

Quantitative risk assessments are therefore based on indirect data – firstly, on the frequency of spontaneous mutations in the germline of the human race and secondly, on experimental studies tracking the descendants of radiation-exposed rodents.

There is very little *tritium-specific* data and the risk assessments are taken from calculations based on data on the hereditary effects of ionising radiation in general.

Thus, based on the fact that there is no cell division in oocytes from the foetal period until fertilisation, British researchers calculated the risk of a woman passing on a radiation-induced anomaly 30 years after her mother ate Cardiff Bay fish containing OBT during pregnancy. The oocyte dose was estimated to be by 2.7-5.4 mGy and the calculated risk value was an undetectable increase in risk.

The handful of experimental studies performed in the USA on induced mutations (spermatogenesis) following chronic exposure to HTO gave results that were similar to those obtained with X-ray or gamma radiation exposure. However, reservations should be expressed as to the validity of cross-species extrapolation based on these experimental studies.

Data regarding the potential induction of hereditary effects should be critically assessed and with great care. New approaches should be investigated, in light of the latest advances in biology. New tools in the fields of genetics and cellular imaging can be used to analyse the transmission of lesions and their consequences (by studying recessive mutations, non-coding regions that are important for verifying genome integrity, gene expression, etc.). In addition, genomics tools can be used to identify the transmission of a hereditary characteristic (not spontaneously apparent) through several generations of a family.

4.5 In utero exposure

The former Chairman of German radiation protection commission SSK presented and discussed experimental data on the effects of embryo exposure to tritiated thymidine and tritiated arginine (histone

precursor) at the pre-implantation stage of pregnancy (*in vitro* experiments). Given the heterogeneous distribution and specific incorporation into DNA, tritiated thymidine is 1,000 to 5,000 times more effective than tritiated water in inducing harmful effects at the same level of applied activity. The effect is even more marked with tritiated arginine (factor of 10,000) and can be observed at lower levels of activity. Given mechanisms at work, this observation could be relevant to other cell types and systems with regard to mutagenicity. However, it should be noted that these *in vitro* studies performed at high levels of specific activities are not necessarily representative of *in vivo* situations.

The CEA (Life Sciences Department) presented a summary of work into the *in utero* effects of tritium. Tritium (HTO or tritiated organic molecules) crosses the placental barrier fairly easily. As for other ionising radiations, beta radiation from tritium causes local apoptosis and mutagenesis, which can lead to tumours or functional consequences by negatively affecting organogenesis (the mechanisms of cell proliferation, migration and differentiation that are closely linked in an embryo). The central nervous system seems to be a particularly vulnerable target. Tritium concentration in this system is 3 to 20 times higher than in other organs, and at values of just a few cGy (roughly 1 GBq.L⁻¹ of tritium), deterioration of cognitive functions can be observed, along with a reduction in the number of neural cells. Transfer of tritiated organic molecules to the foetus is a process of active transport and the molecules are preferentially incorporated into the DNA of cells that are actively multiplying. The CEA has concluded that the studies currently available are difficult to analyse because of their disparate nature and that further in-depth study is required into the effects of tritium (HTO and tritiated organic molecules) after exposure during *in utero* development.

All members of the group agree that further research is vital in order to improve knowledge of the effects of tritium exposure on embryos and foetuses.

5 Recommendations from the “Tritium Impact” working group

The various recommendations issued by the group are summarised below. Clearly, the one key word that comes up repeatedly is (further) “research”.

With respect to the environment, the group recommends the following (in order of priority):

1. Current work to validate and standardise measurement and sampling methods and protocols (“to be sure of what is measured”) should be continued and carried out within an international framework;
2. Appropriate environmental measurement campaigns should be used, with a scientific approach to clear up doubts and assess the effect of the various factors at stake, in particular regarding the distribution of tritium in the different compartments (including organic matter in sediment) and to better define the free and organically-bound tritium components in living species. In the marine environment, these campaigns must focus on a large enough number of edible marine produce samples from various trophic levels (flat fish, crustaceans, molluscs, etc.);
3. Given the major diversity of tritiated organic molecules, caution is needed in drawing conclusions and making extrapolations and the chemical speciation of discharges from potentially relevant sites needs to be characterised;
4. Given the still fragmentary nature of current knowledge on remanence and on tritium behaviour in sediment, targeted multidisciplinary studies with rigorous protocols need to be used to provide experimental verification of the hypotheses put forward in older studies, in particular regarding the possible influence of the activity of microorganisms in aquatic sediments when organic tritium is remobilised in aquatic animal organisms. In general, the scientific data regarding the conversion of tritiated water into organic tritium along the food chain should be enhanced. Reliable quantitative estimates are required.

With respect to health effects, the group recommends the following (in priority order):

1. Up-to-date methods should be used to gather further knowledge on the effects of tritium, in order to enable comprehensive characterisation of the physico-chemical forms used (covering a concentration scale that would include industrial discharges) and the biological mechanisms at work, focusing not

only on aspects relating to carcinogenesis, and looking at age at the time of exposure and at differences between accident-related and chronic exposure;

2. Knowledge of the effects of tritium exposure on embryos and foetuses should be improved. Further research in this area is vital;
3. Data regarding the potential induction of hereditary effects should be critically assessed and with great care. New approaches should be investigated, in light of the latest advances in biology;
4. The *feasibility* of epidemiological studies in French workers should be assessed, since it would be useful to gather data on tritium exposure and to process this data in a coordinated manner alongside other ongoing studies around the world;
5. A radiation weighting factor (w_R) of 2 (instead of 1) should be used in individual risk assessment situations. No consensus was reached within the group as to the factor to be used in routine situations.

Summary of work and recommendations by the “Tritium: Defence in Depth” working group

Mr Roland Masse, Chairman

1. Sources of tritium releases

The natural balance of tritium was profoundly altered by atmospheric atomic weapons testing between 1945 and 1963, releasing approximately 240 EBq (650 kg) of tritium into the environment. These emissions increased the concentration in rainwater to several hundred Bq.L⁻¹ in the Northern hemisphere. It has now fallen back to approximately 1 Bq.L⁻¹. The oceans form the receiving destination for all tritium releases. In 1998, surface-level concentration in seawater at the equator was 0.1 Bq.L⁻¹. Average concentration is of the order of 10 Bq.L⁻¹ in the Channel, and is locally several hundred Bq.L⁻¹, which is generally related to discharges from nuclear facilities. In some rivers, the value can get as high as several hundred Bq.L⁻¹ locally.

The world's nuclear reactors discharge 12,000 TBq (0.035 kg) of tritium on an annual basis, chiefly in liquid form as tritiated water and 6,000 TBq (0.018 kg) as tritium gas. Fuel reprocessing plants, chiefly the La Hague plant, discharge 12,000 TBq (0.035 kg) of tritium in liquid form and 70 TBq (0.0002 kg) as tritium gas.

In France, tritium releases from military facilities have significantly fallen in the last 20 years. The overall trend is also decreasing, but this is a result of the gradual disappearance of the tritium inventory formed due to atmospheric testing (of which approximately 10.5 EBq (30 kg) remained in 2010).

Developments in civilian industrial technologies and the implementation of optimisation principles have led to significant reductions in discharges of most radioactive elements into the environment over the last few decades. This does not however apply to tritium, the noble gases and carbon 14. Industrial sources of tritium releases have, for instance, doubled over the last twenty years at the La Hague reprocessing centre (because the electricity generated by the reprocessed fuel doubled over the same period) and also due to:

- a growing fleet of operating NPPs,
- changes both in fuels used and reactivity controls in PWR plants,
- the potential commissioning of fusion reactors in the future, which suggests that the trend will be lasting, even though the use of fusion energy will initially give tritium a high added-value, which will have the effect of reducing losses.

2. The issue of reducing tritium's impact

The OSPAR Convention recommends that the aim should be to bring radionuclide concentrations towards their natural levels, taking into account their impact and the possible reduction techniques (Sintra accords). It is therefore legitimate to seek to reduce the impact of tritium, even if it is already low. This goal should be set within an overall radiation protection framework, because planned solutions to reduce the impact of tritium should not hinder the overall policy of reducing collective doses or lead to an inequitable increase in dose for workers.

The need to refer to an assessment of the overall radiological impact of practices highlights the relatively low radiotoxic potential of tritium (although this is disputed) and the differentiated potential of tritium gas, tritiated water and organic compounds (OBT: organically bound tritium) with respect to other sources of human exposure. Using the dose conversion factors specified in current legislation, tritium exposure causes an annual dose of less than 0.1 µSv for the reference groups at La Hague (contribution less than 1% of the impact over and above natural background radiation) and 0.4 µSv for the reference groups in villages close to Valduc. These conversion factors could be increased (see the conclusions of the

“Radiological Impact” working group), but whatever the final values, the expected result does not seem likely to alter the order of magnitude of the impact or the optimisation of practices.

The initial source of tritium production in France is the operation of PWR nuclear power plants. Tritium production in the fuel remains sequestered and only makes a marginal contribution to human exposure. The main source of tritiated discharges is due to neutron activation within the reactor coolant system. Tritium production could be reduced by increasing the isotopic concentration of boron 10 and lithium 7, but the benefit would only be slight. The boron in the reactor coolant system of PWR plants cannot be replaced. The secondary source rods add a further contribution to the discharges, which can be slightly reduced, but the figures for this are not available. Approximately 98% of discharges from PWR plants occur in liquid form. Given the relative radiological impact, which is on average 100 times higher for gaseous emissions than liquid discharges at sea-shore sites, it may be useful to look at further increasing the ratio of liquid emissions. However, this solution assumes appropriate outlet channels, which have already been taken into account in the impact studies. Given the low radiological impacts and the volume of effluent to be treated, detritiation is not realistic.

EDF has a fuel development programme whose aim is to increase the electricity generated by each tonne of uranium and to reduce the quantity of waste. However these developments have tended to lead to an increase in tritium production. The ARCO association highlighted the fact that at Flamanville, tritium discharges have doubled due to an increase in electricity generation of just 4.5%.

The La Hague fuel reprocessing plant is the main source of tritium releases, mostly in the form of liquid discharges, given the relative impact which is 1,000 times lower than for atmospheric releases. Given the potentially large volumes to be treated (of the order of 40,000 m³ per year) and the very low activity concentration at the time of discharge, detritiation is not achievable with currently available technologies. Reducing waste volume further up the process would lead to occupational exposure levels that would be incompatible with process optimisation. Various areas for discussion, R&D and process improvement have been identified, in particular:

- the need to assess which process changes or fuel reprocessing options have a genuine industrial future (voloxidation, pyroprocessing, etc.);
- the necessary discussions regarding design of a reprocessing plant with fewer site-specific advantages than La Hague in terms of radiological capacity, which would not therefore be granted the same effluent release permits.

PHENIX, SUPERPHENIX and fast breeder reactor designs were not extensively discussed, despite the fact that the forthcoming GEN IV programme will soon be making the headlines. Tritium production is higher than in PWR plants and 95% of the tritium formed in the fuel passes into the molten sodium in the reactor coolant system. The borated control rods add a significant contribution and tritiated methane is formed. Tritium releases, standardised for one GWe, are overall twice as high as in the PWR design. The tritium could be recovered and reused from the molten sodium in the SUPERPHENIX reactor. The radiological impact of this operation needs to be more closely analysed.

A small fraction of the tritium produced in nuclear reactors is recycled by small producers in order to create synthetic tritium-labelled molecules for industrial uses (luminescence) and for research. Although these sources only represent a small volume of waste, they can cause significant inadvertent environmental marking. The radiological impact of this is difficult to identify and depends largely in speciation. An appropriate outlet channel should be provided in order to manage these sources.

Tritiated waste is stored in various centres run by the French National Radioactive Waste Management Agency (ANDRA). Some tritium-marking in ground water has been traced to the “Centre Manche” (CSM), in places reaching values of several hundred Bq/L, leading to various assessments of potential developments over time. Work to characterise the source and the transfers to outlet routes needs to be continued and the predictions need to be reinforced by taking appropriate measurements. The Soulaines and Morvilliers centres have been subject to prudent management of the tritium radiological capacity and to tough rules as to the intake of waste packages. This situation has meant that environmental marking has

remained low. However, ANDRA does not have actual authorisations for tritiated waste, which leaves many sources of tritiated waste without a permanent home. The solution described in the CEA report drafted under the 2006 Act is 50 years interim storage, until a new disposal site is opened, with the appropriate authorisations.

Some defence sites have nuclear purification, recycling and storage facilities, for manufacturing weapons subassemblies and for reprocessing or neutralising waste. This is the case at the CEA centres at Valduc, Marcoule and Bruyères-le-Châtel. Monitoring of these facilities has shown a hundred-fold decrease in releases since the 1970s and 1980s, with gaseous releases of 95 TBq (0.3 g) at Valduc in 2007, for instance. This reduction in releases has been achieved by detritiation of highly tritiated waste by using heat treated to separate tritiated water from a solid substrate. The tritiated water is then trapped on zeolite. The resulting volumes are low and the waste is stored at the Valduc centre. The practice is optimised and research is continuing into the recovery and use of the tritiated water. The working group noted a lack of data about certain facilities that are the exclusive responsibility of the French Ministry of Defence (reactors on sea-going vessels).

Fusion reactors are seen as a possible energy-generation option in the future (unclear exactly when). The ITER research facility which will provide data for the design of a prototype fusion production reactor is due to be commissioned in 2019 for the non-nuclear phase and to enter nuclear phase in approximately 2025. It will have a process inventory of approximately 1 kg of tritium (358 PBq). No tritium release permits have yet been issued. The ITER design incorporates the notion of defence in depth in its operating methods, with respect to tritium, which is the fuel in the machine. This means that multiple static confinement barriers and dynamic confinement systems are planned, including detritiation and atmosphere treatment at source, limits on the water quantities allowed and water recycling and detritiation. One whole facility is entirely dedicated to tritium, to injecting the deuterium-tritium mixture into the tokamak, and to extracting, recovering and purifying the tritium for reuse. The feasibility of decommissioning was incorporated at design phase. It takes into account the classification of the waste generated – VLLW, L/ILW and LLILW, the outlet channels available and the availability of the site for interim storage of its operational waste. The facility follows the guidelines of the French National Plan for the management of radioactive substances and waste (PNGMDR).

3. Recommendations from the “Tritium Impact” working group

In conclusion, the working group puts forward the following recommendations and observations.

- Management of the current processes enables discharges from all facilities to be recorded and calculated; for the La Manche storage centre, work to characterise the source and the transfers to outlet sources should be improved and these predictions need to be reinforced with measurement data.
- Detritiation in PWR reactors in NPPs would only have a limited effect on the radiological impact is not currently achievable at an acceptable cost. The associations ACRO and ANCLI are opposed to the use of new fuels, on the basis of the precautionary principle, for as long as doubts remain as to the tritium impact.
- Detritiation is not achievable in the La Hague plant with the best technologies currently available and in any case it would only have a limited effect on the radiological impact. The discharge/waste strategy to promote tritium storage and recovery at an acceptable cost could only be considered for materials with high-level tritium activity. The associations ACRO and ANCLI are requesting that the oldest fuels be prioritised for reprocessing in order to limit releases, but AREVA and EDF consider that the practice is optimised in this respect.
- In the view of ACRO and ANCLI, a reduction in tritium production from civilian and military facilities is required.

- Absolute containment of tritium is an issue that is both technical and financial and determines the development of containers.
- Tritiated waste management in future repositories will require specific permits, enabling the tritium to be appropriately accounted. Specific management schemes should be accessible for small producers.
- Assessment of the tritium impact of above-ground repositories requires continuous improvement of the knowledge of source terms, the various transfer pathways from the waste and the associated transfer processes, and also requires the relative weight of the various transfer pathways to be quantified according to the technical solutions selected.
- Dedicated interim storage facilities to allow tritiated waste from various sources to decay should be put into service, in accordance with the Decree pursuant to the French National Plan for the management of radioactive substances and waste (PNGMDR 2007-2009).
- The development of detritiation work carried out on behalf of ITER should be monitored.