

Le tritium dans l'environnement

Synthèse des connaissances

Rapport DEI 2009-05

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE L'INTERVENTION

HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires

LISTE DE DIFFUSION

Nom	Organisme

LISTE DES AUTEURS

Collectif	Chapitres 1 et 2
O. Pierrard	Chapitre 3 : Origines naturelles et anthropiques du tritium
R. Gurriaran	Chapitre 4 : Métrologie du tritium
C. Antonelli, P. Bailly du Bois, B. Fiévet, M. Masson, P. Renaud	Chapitre 5 : Concentrations dans les différents compartiments de l'environnement
K. Beaugelin-Seiller, D. Maro, S. Roussel-Debet	Chapitre 6 : Mobilité du tritium et flux dans les écosystèmes
K. Beaugelin-Seiller, P. Boyer, S. Le Dizes-Maurel,	Chapitre 7 : Modélisation du comportement du tritium dans les écosystèmes
C. Adam-Guillermin, J. Garnier-Laplace	Chapitre 8 : Effets toxiques du tritium pour les organismes vivants terrestres et aquatiques
J.C. Gariel	Coordination

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 µGy/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-CLES

Tritium, environnement, origines, comportement, métrologie, surveillance, milieux marins et aquatiques, spéciation, mobilité, flux, effets

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION	1
2. PROPRIÉTÉS NUCLÉAIRES ET PHYSICO-CHIMIQUES DU TRITIUM	2
2.1. LE TRITIUM, ISOTOPE RADIOACTIF DE L'ÉLÉMENT HYDROGÈNE	2
2.2. LE COMPORTEMENT PHYSICO-CHIMIQUE DU TRITIUM.....	2
2.2.1. Le tritium dans le cycle de l'eau	2
2.2.2. Métabolisme du tritium chez les êtres vivants	3
2.2.3. Notions de bioaccumulation, de bioamplification et de rémanence	5
3. ORIGINES NATURELLES ET ANTHROPIQUES DU TRITIUM	7
3.1. PRODUCTION NATURELLE DE TRITIUM	7
3.2. ORIGINE ARTIFICIELLE ET QUANTITÉS REJETÉES DANS L'ENVIRONNEMENT EN FRANCE ...	7
3.2.1. Essais d'armes nucléaires	7
3.2.2. Rejets des centres nucléaires de production d'électricité (EDF)	7
3.2.3. Usine de traitement de combustibles irradiés de La Hague (AREVA NC)	9
3.2.4. Centre nucléaire de Valduc (CEA/DAM)	11
3.2.5. Centre d'études de Bruyères-le-Châtel (CEA/DAM)	12
3.2.6. Centre de Marcoule (CEA - AREVA)	12
3.2.7. Centre d'études de Saclay (CEA)	13
3.2.8. Centre d'études de Cadarache (CEA)	14
3.2.9. Projet ITER.....	14
3.2.10. Institut Laue-Langevin (ILL) de Grenoble	14
3.2.11. Déchets nucléaires immergés en mer	14
3.3. SYNTHÈSE	14
4. MÉTROLOGIE DU TRITIUM.....	16
4.1. ÉCHANTILLONAGE ET PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS EN VUE DE LA MESURE DU TRITIUM	16
4.2. MÉTROLOGIE DU TRITIUM LIBRE.....	18
4.2.1. Scintillation liquide	18
4.2.2. Comptage proportionnel	18
4.2.3. Méthodes d'enrichissement en tritium	19
4.3. MÉTROLOGIE DU TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE.....	19
4.3.1. Combustion dans un four tubulaire (PYROXYDISER)	20
4.3.2. Oxydiser	20
4.3.3. Mesure par l'hélium-3	21
4.4. SYNTHÈSE	22
5. CONCENTRATIONS DE TRITIUM OBSERVÉES DANS LES DIFFÉRENTS COMPARTIMENTS DE L'ENVIRONNEMENT.....	23
5.1. LE TRITIUM DANS LES COMPARTIMENTS DES MILIEUX TERRESTRE ET AQUATIQUE CONTINENTAL	23
5.1.1. Sources des données disponibles.....	23

5.1.2. Niveaux actuels et évolutions de la concentration du tritium dans les eaux de pluie et dans l'air	23
5.1.3. Tritium libre et organiquement lié dans les autres compartiments des écosystèmes continentaux.....	24
5.2. CONCENTRATIONS CARACTÉRISTIQUES EN MILIEU MARIN.....	31
5.2.1. Niveaux actuels et évolutions de la concentration de tritium dans les océans	31
5.2.2. Niveaux actuels et évolutions des activités volumiques de tritium dans les organismes marins - rapports OBT/HTO observés.....	35
5.2.3. Synthèse sur le milieu marin	39
6. TRANSFERT DU TRITIUM DANS LES ÉCOSYSTÈMES	40
6.1. TRANSFERT DU TRITIUM ATMOSPHÉRIQUE DANS LES ÉCOSYSTÈMES TERRESTRES	40
6.1.1. Dispersion atmosphérique du tritium	40
6.1.2. Dépôt au sol du tritium atmosphérique.....	41
6.1.3. Comportement des dépôts de tritium dans le sol.....	44
6.1.4. Incorporation et devenir du tritium dans les végétaux terrestres	45
6.1.5. Incorporation et devenir du tritium dans les animaux de cheptel.....	53
6.2. ÉCOSYSTÈMES AQUATIQUES (EAUX DOUCES)	54
6.2.1. Transferts dans les hydrosystèmes continentaux	54
6.2.2. Comportement du tritium dans les organismes aquatiques.....	55
6.2.3. Transfert du tritium entre l'eau et l'atmosphère	58
6.3. SYNTHÈSE DES CONNAISSANCES SUR LE COMPORTEMENT DU TRITIUM DANS LES ÉCOSYSTÈMES	58
7. MODÉLISATIONS DU COMPORTEMENT DU TRITIUM DANS LES ÉCOSYSTÈMES	61
7.1. ÉCOSYSTÈMES TERRESTRES	61
7.1.1. Modèles existants.....	61
7.1.2. Description succincte du modèle TOCATT.....	64
7.2. ÉCOSYSTÈMES AQUATIQUES	66
7.2.1. Modélisation de la dispersion du tritium en milieu marin.....	66
7.2.2. Modélisation de la dispersion du tritium et des processus physiques associés au sein des hydrosystèmes d'eau douce.....	67
7.3. SYNTHÈSE SUR LES MODELES DE TRANSFERT DANS LES MILIEUX TERRESTRES ET AQUATIQUES.....	72
8. EFFETS TOXIQUES DU TRITIUM POUR LES ORGANISMES VIVANTS TERRESTRES ET AQUATIQUES	74
8.1. MÉCANISMES D'INTERACTION AUX NIVEAUX MOLÉCULAIRE ET CELLULAIRE	74
8.2. EFFICACITÉ BIOLOGIQUE RELATIVE DU TRITIUM POUR LES ESPÈCES NON-HUMAINES	75
8.3. RELATION ENTRE CONCENTRATIONS D'EXPOSITION ET DOSES DÉLIVRÉES AUX ORGANISMES	77
8.4. RELATIONS ENTRE LE NIVEAU D'EXPOSITION ET LA RÉPONSE DES GRANDES FONCTIONS BIOLOGIQUES DES ORGANISMES EXPOSÉS.....	79
8.4.1. Toxicité du tritium pour les organismes aquatiques	80

8.4.2. Toxicité du tritium pour les organismes terrestres végétaux et animaux	84
8.4.3. Synthèse sur l'écotoxicité du tritium	87
8.4.4. Analyse de la toxicité du tritium à partir de l'établissement de relations dose-effet pour les espèces.....	89
8.5. CONSÉQUENCES POUR LES ÉCOSYSTÈMES : VALEUR GUIDE SANS EFFET	92
9. CONCLUSION	94
10. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	98
ANNEXE 1.....	112
ANNEXE 2.....	113
ANNEXE 3.....	115
ANNEXE 4.....	117

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 μm) 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)

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

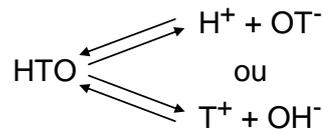
(2) le tritium gazeux ou « hydrogène tritié » HT : cette forme chimique, qui ne concerne qu'une fraction des rejets atmosphériques de tritium (cf. § 3), pourrait prendre de l'importance avec le développement des recherches sur la production d'énergie par fusion nucléaire. Sous l'effet de processus d'oxydation, 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 OT^-) à se lier à des molécules basiques ou acides, dont certaines peuvent être des molécules organiques (cf. § 2.2.2).

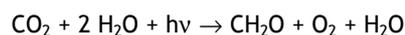
De la même façon, l'eau tritié à l'état de vapeur a une capacité d'échange rapide avec l'eau légère (H_2O).

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.

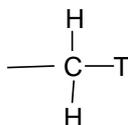
Pour l'ensemble des animaux, qui sont des organismes hétérotrophes, la biosynthèse des molécules organiques nécessaires à la constitution des cellules et des tissus ainsi qu'au métabolisme est réalisée à partir de molécules organiques venant de l'alimentation. Toutefois, dans le cas de l'élément hydrogène, 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) :

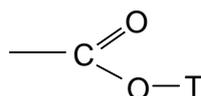
- le tritium dit *libre* sous forme d'eau tritiée, HTO (en anglais TFWT, tissue free water tritium) qui est défini comme étant le tritium de la fraction extraite de l'échantillon par dessiccation (en général, lyophilisation) ;
- le tritium dit *organiquement lié* (TOL, ou organically bound tritium (OBT) 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 organismes ⁽¹⁾. 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).

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).

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 10^{18} 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 (H_2O).

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. 54).

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 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.

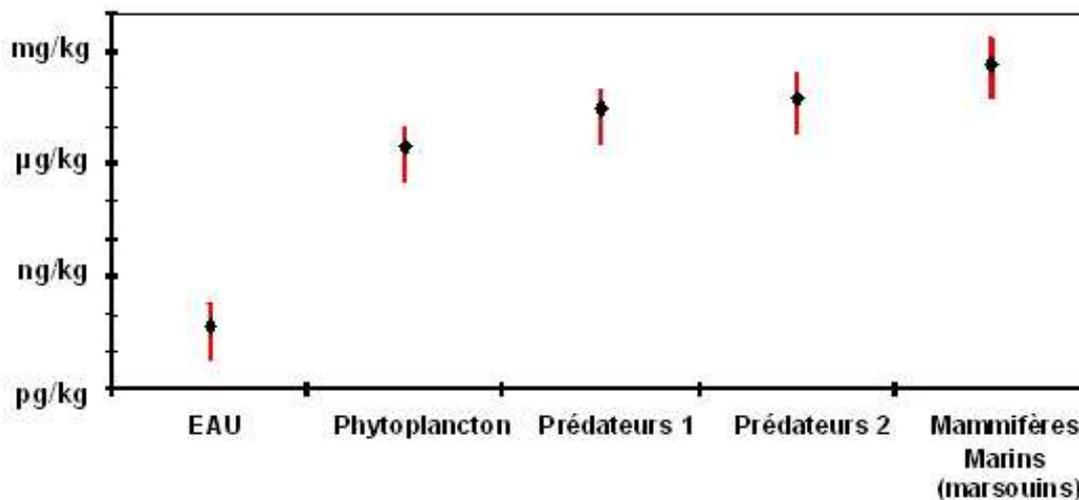


Figure 2.1 - Illustration de la bioaccumulation et de la bioamplification des PCB dans des organismes marins (IFREMER - www.ifremer.fr). La concentration dans le phytoplancton (premier maillon de la chaîne trophique) est nettement supérieure à celle du milieu ambiant (eau) ; la concentration continue de croître dans les maillons suivants, traduisant une bioamplification via l'alimentation.

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.

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).

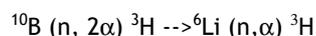
3.2. ORIGINE ARTIFICIELLE ET QUANTITÉS REJETÉES DANS L'ENVIRONNEMENT EN FRANCE

3.2.1. Essais d'armes nucléaires

Les explosions atmosphériques d'armes nucléaires réalisées de 1945 à 1980 ont disséminé une quantité de tritium estimée à 234 000 PBq ($234 \cdot 10^{18}$ Bq), ce qui correspond à environ 650 kg (UNSCEAR, 2000). Compte tenu de la décroissance radioactive du tritium, l'inventaire global de tritium dû aux explosions nucléaires peut être estimé aujourd'hui à une masse de l'ordre de 35 kg de tritium², principalement localisée dans les océans.

3.2.2. Rejets des centres nucléaires de production d'électricité (EDF)

Origine. Le tritium rejeté par les Centres Nucléaires de Production d'Électricité (CNPE) provient essentiellement des réactions d'activation neutronique sur le bore-10 (plus de 85 %) et le lithium-6 présents dans l'eau du circuit primaire :



Il est aussi formé lors des fissions ternaires de certains isotopes de l'uranium et du plutonium. Le tritium produit par les réactions de fission reste en grande partie dans le combustible lui-même (environ 87 %), ainsi que dans les

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

gaines de zircaloy où il se trouve sous forme d'hydrure de zirconium (environ 13 %). Le dégagement de tritium dans l'eau du circuit primaire est minime et se produit seulement en cas de défauts dans les gaines de zircaloy. Le relâchement du tritium de fission au cours du fonctionnement d'un réacteur se limite à 0,1-1% du tritium ainsi produit. Il est libéré pour la plus grande part lors du retraitement du combustible. Le tritium formé par activation neutronique constitue donc la quasi-totalité de ce qui est rejeté par les CNPE d'EDF, majoritairement sous forme HTO dans les **rejets liquides** (95 %). La production de tritium, et en conséquence son activité dans les rejets liquides, dépend des éléments chimiques contenus dans l'eau du circuit primaire, du type de combustible et du mode de gestion de ce dernier. Le passage à de nouveaux modes de gestion pour les réacteurs 1300 MWe (dit mode GEMMES) depuis 2001 a induit une augmentation du tritium dans les rejets liquides. Les modes de gestion à haut taux de combustion à venir (GALICE UO₂, HTC₂), qui visent l'optimisation de l'utilisation du combustible et des arrêts de tranche, augmenteront encore les rejets de tritium dans les effluents liquides et ce pour l'ensemble des tranches. Ces augmentations contraignent aujourd'hui les exploitants à demander des révisions à la hausse des limites annuelles autorisées.

Les rejets gazeux de tritium proviennent essentiellement de la ventilation des piscines du « bâtiment combustibles » et des réservoirs intermédiaires du système de traitement des effluents primaires. Il est à noter que pour les tranches de 1300 MWe, le système spécifique de ventilation de la bache TEP intermédiaire induit des rejets gazeux en tritium plus importants que pour les tranches de 900 MWe et de 1450 MWe. Le tritium rejeté par les cheminées se présente essentiellement sous forme HTO (vapeur d'eau).

Activités rejetées. Pour les effluents liquides, les mesures des activités de tritium sont réalisées avant rejet sur chacune des cuves de rétention des effluents liquides radioactifs. Pour les effluents gazeux, le tritium est prélevé dans un barboteur d'une chaîne d'échantillonnage implantée dans la cheminée. Le prélèvement s'effectue sur une semaine.

Les activités volumiques de tritium mesurées usuellement sont présentées dans le tableau 3.1. Ces valeurs, comparées à celles des autres radionucléides rejetés, illustrent la prépondérance en termes d'activités rejetées du tritium tant dans les effluents liquides que dans les effluents gazeux (hors gaz rares) (Fig. 3.1).

Tableau 3.1 - Activité volumique du tritium dans les effluents des CNPE en fonctionnement normal (source IRSN)

Effluents gazeux	400 à 500 Bq/m ³
Effluents liquides	600 000 à 4 000 000 Bq/L

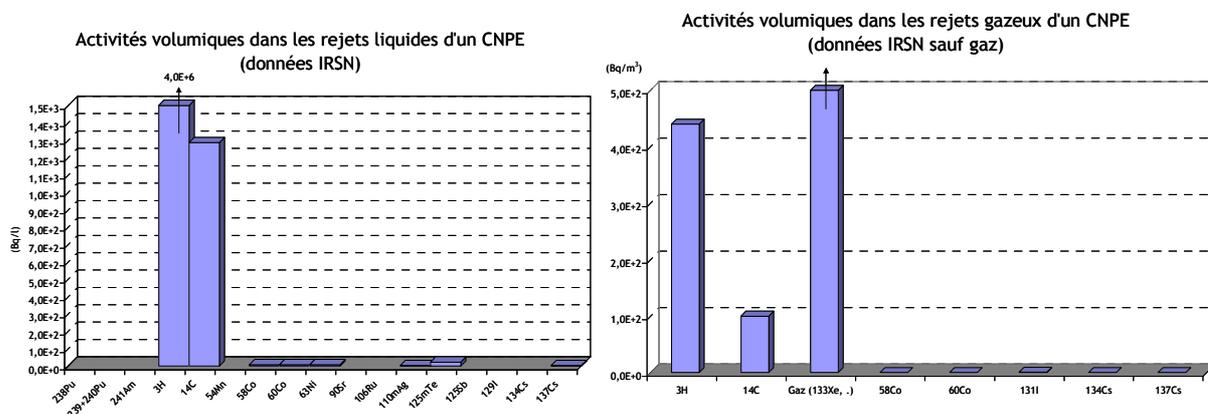


Figure 3.1- Spectres types des radionucléides présents dans les effluents liquides et dans les effluents gazeux d'un CNPE (données IRSN)

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.

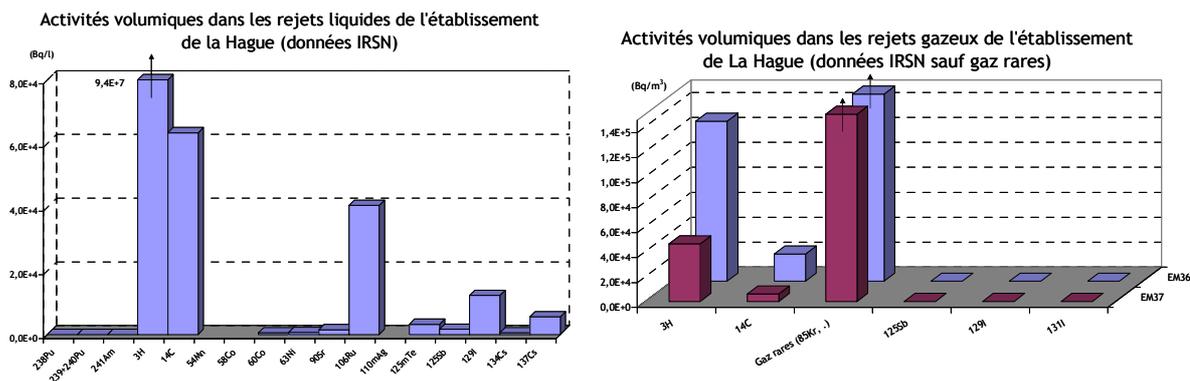


Figure 3.2 - Spectres types des radionucléides présents dans les effluents liquides et dans les effluents gazeux des usines AREVA de La Hague (données IRSN)

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.

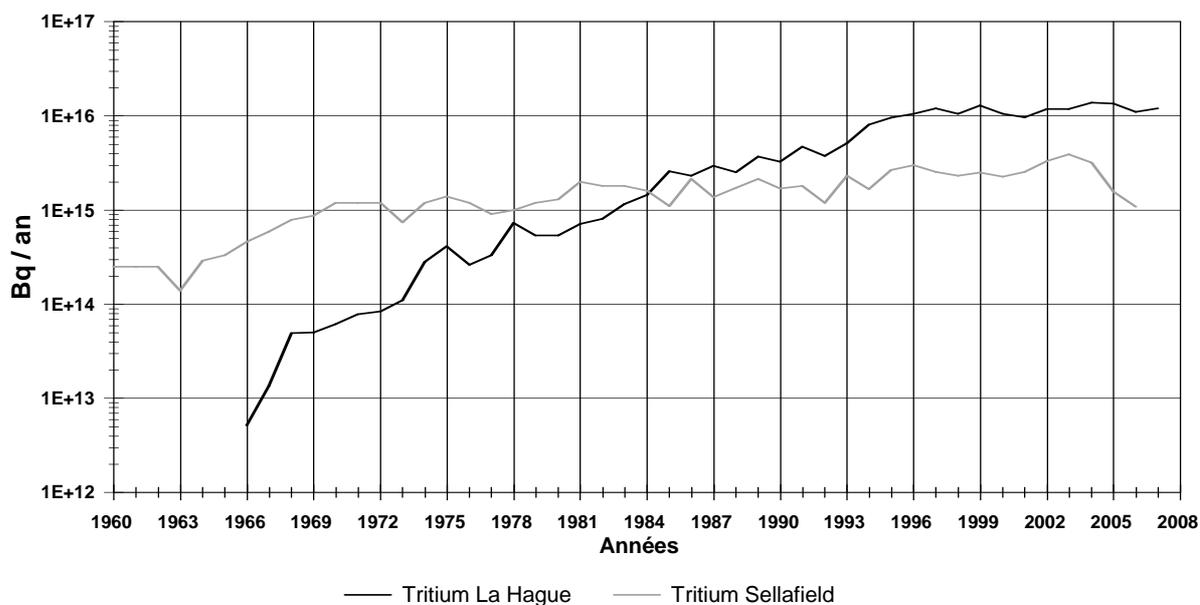


Figure 3.3 - Rejets de tritium dans la Manche et la Mer du Nord des usines de traitement de combustibles nucléaires de La Hague (France) et Sellafield (Grande-Bretagne).

3.2.4. Centre nucléaire de Valduc (CEA/DAM)

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).

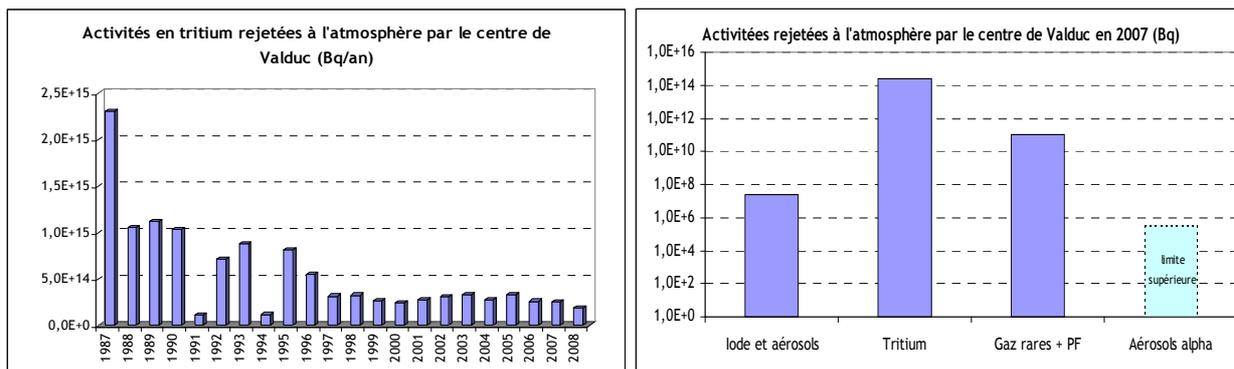


Figure 3.4 - Évolution de l'activité du tritium dans les rejets d'effluents gazeux du centre CEA/DAM de Valduc et catégories de radionucléides présents (données CEA)

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 (Phénix) 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).

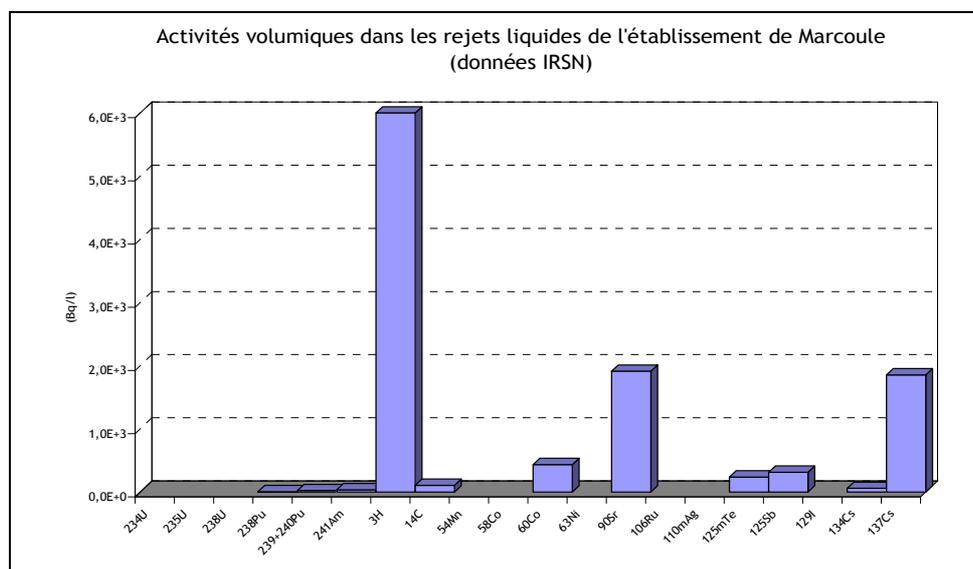


Figure 3.5 - Spectre type des radionucléides présents dans les effluents liquides de l'établissement de Marcoule (données IRSN)

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
<i>Rejets gazeux (TBq/an)</i>	320	390	290	270	370	270
<i>Rejets liquides (TBq/an)</i>	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
<i>Rejets gazeux (TBq/an)</i>	25	36	19	22	20,1	16,0
<i>Rejets liquides (GBq/an)</i>	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
<i>Rejets gazeux (GBq/an)</i>	134	57	26,6	26,6	13,1
<i>Rejets liquides (GBq/an)</i>	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 détritiiés 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).

3.2.10. Institut Laue-Langevin (ILL) de Grenoble

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
<i>Rejets gazeux (TBq/an)</i>	4,4	11	13,1
<i>Rejets liquides (GBq/an)</i>	120	530	220

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.

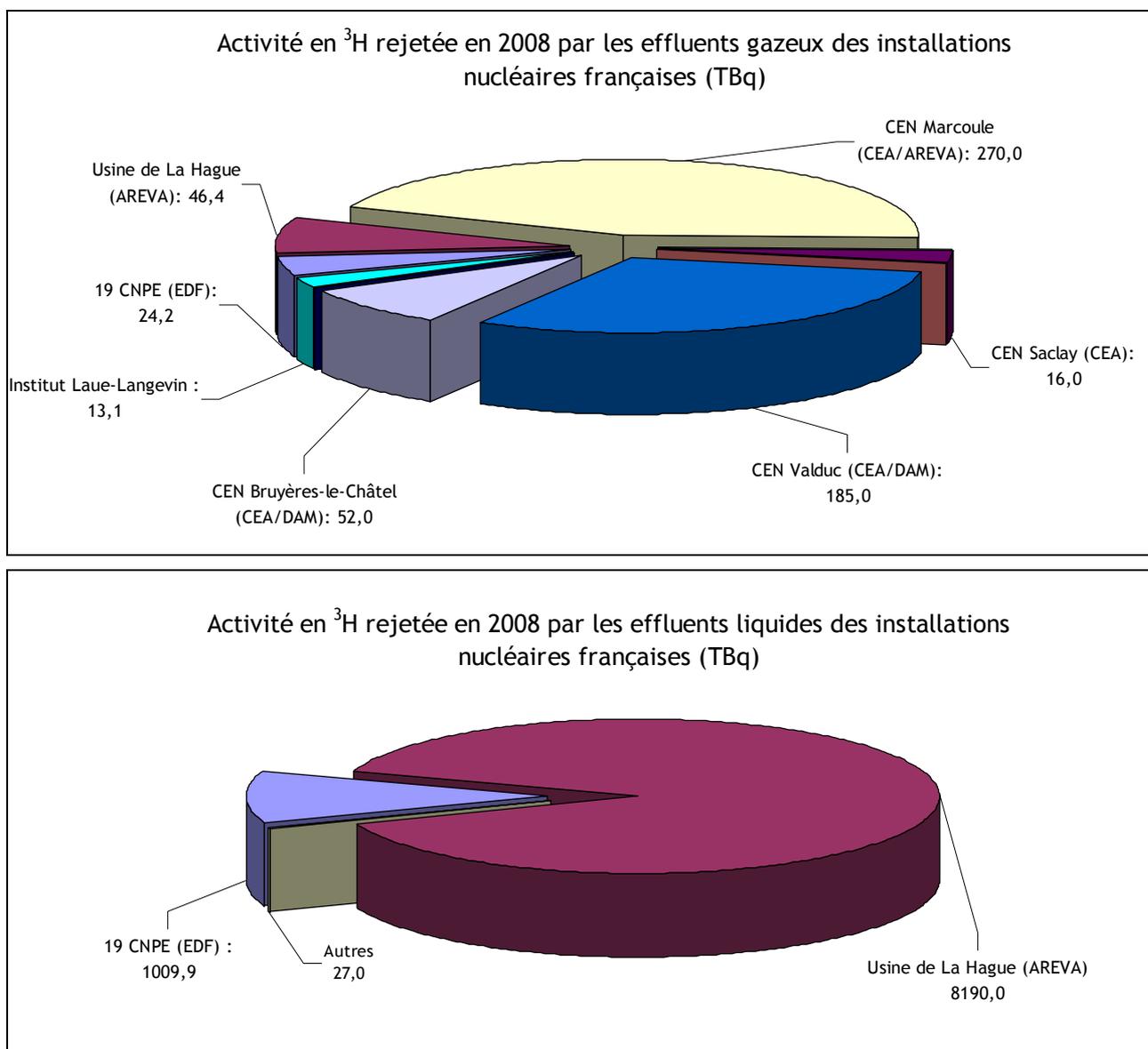


Figure 3.6 - Bilans 2008 des activités de tritium rejetées par les principales installations nucléaires françaises

4. MÉTROLOGIE DU TRITIUM

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 surnage 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.

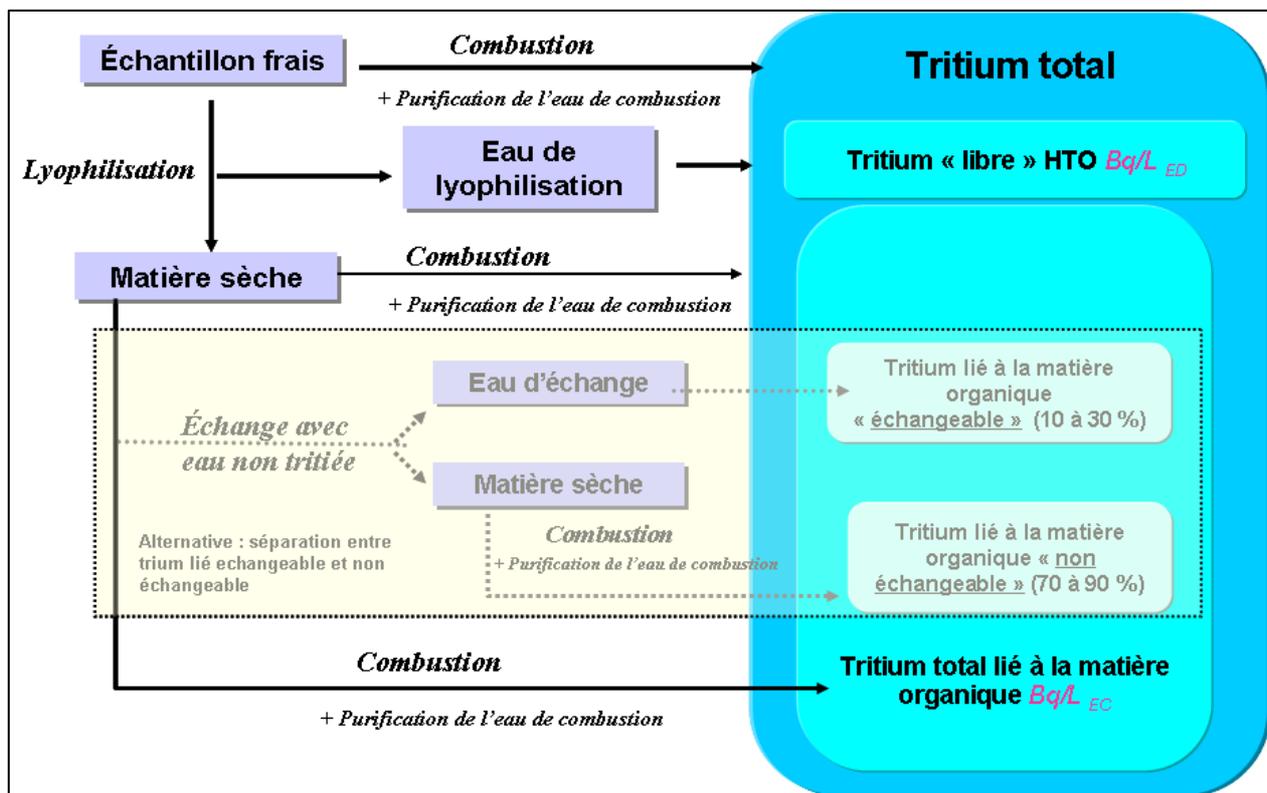


Figure 4.2 - Exemple d'étapes préalables à la préparation des échantillons solides (hors eau, air) pour la mesure du tritium (ED : Eau de Distillation ; EC : Eau de combustion). En gris figure une variante qui consiste à séparer, dans la fraction sèche, le tritium organique échangeable du tritium organique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

4.2. MÉTROLOGIE DU TRITIUM LIBRE

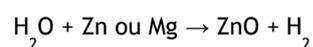
Pour les échantillons solides, une lyophilisation permet de sécher l'échantillon et de récupérer l'eau tritiée (HTO) qu'il contient.

4.2.1. Scintillation liquide

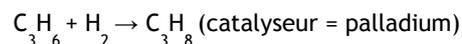
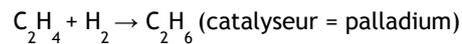
Le principe de la mesure par scintillation liquide (SL) est de mettre en contact le tritium avec un liquide scintillant. Chaque particule β^- émise lors de la décroissance du tritium excite les molécules scintillantes qui, en se désexcitant, émettent de la lumière. Ce transfert d'énergie peut être gêné 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 :



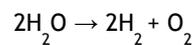
Avant injection dans le compteur proportionnel, le gaz hydrogène peut ensuite être soit mélangé directement à de l'argon, soit transformé en éthane ou propane, selon les réactions suivantes :



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.

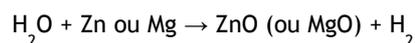
Enrichissement électrolytique. Cette méthode est relativement simple et nécessite peu de manipulation ou de surveillance si ce n'est les précautions contre l'accumulation d'hydrogène et les risques d'explosion associés. La conductivité de l'eau est augmentée par l'ajout de Na_2O ou de NaOH , l'eau est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

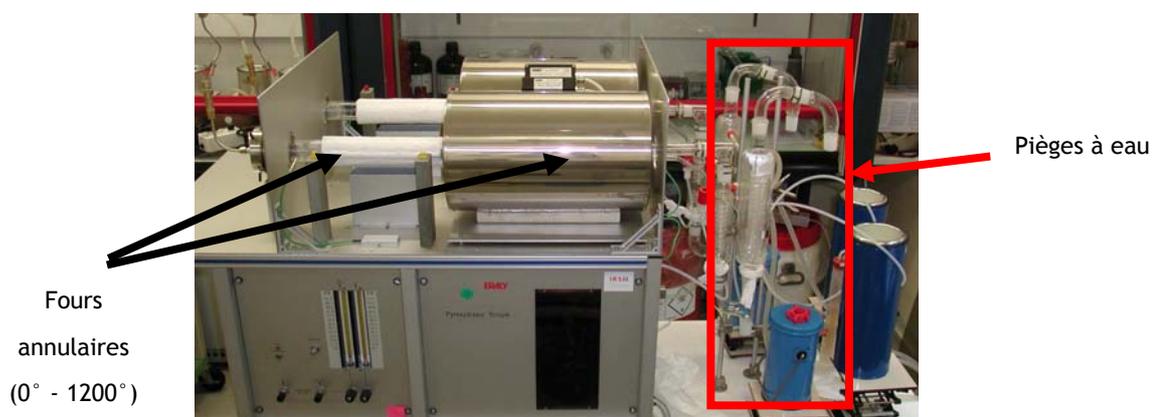


Figure 4.3 - Dispositif de mesure du tritium organiquement lié par combustion dans un four tubulaire (Pyroxydiser).

4.3.2. Oxydiser

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).

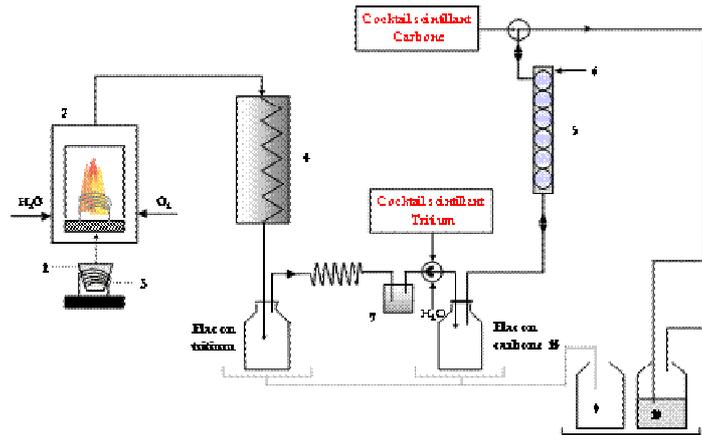
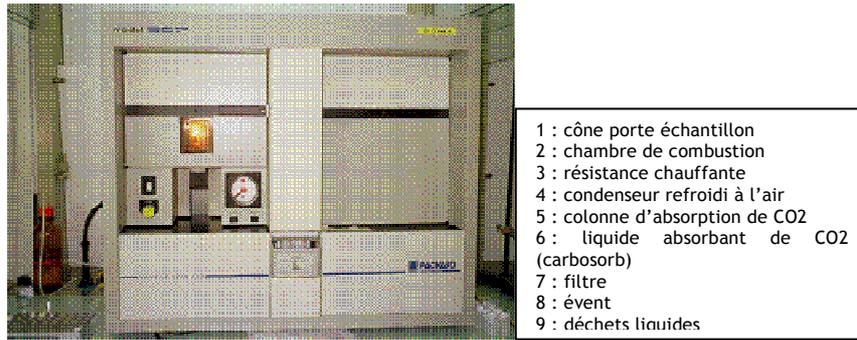


Figure 4.4 - Schéma de principe de la mesure du tritium organiquement lié par Oxydiser.

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 :

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

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.

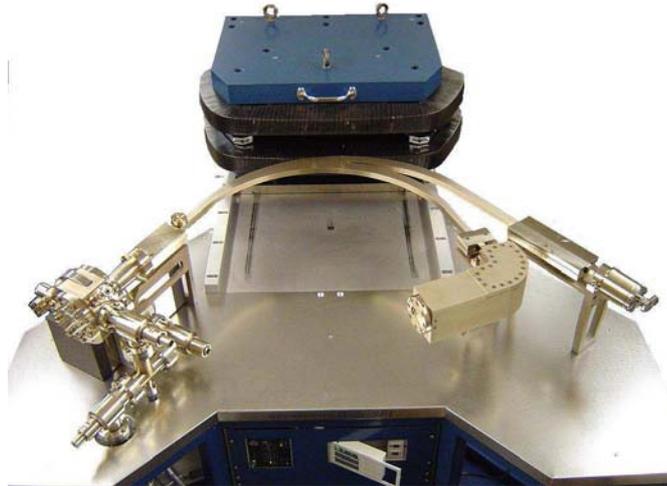


Figure 4.5 - Spectromètre de masse pour mesure des isotopes de l'hélium

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 (^3He) 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).

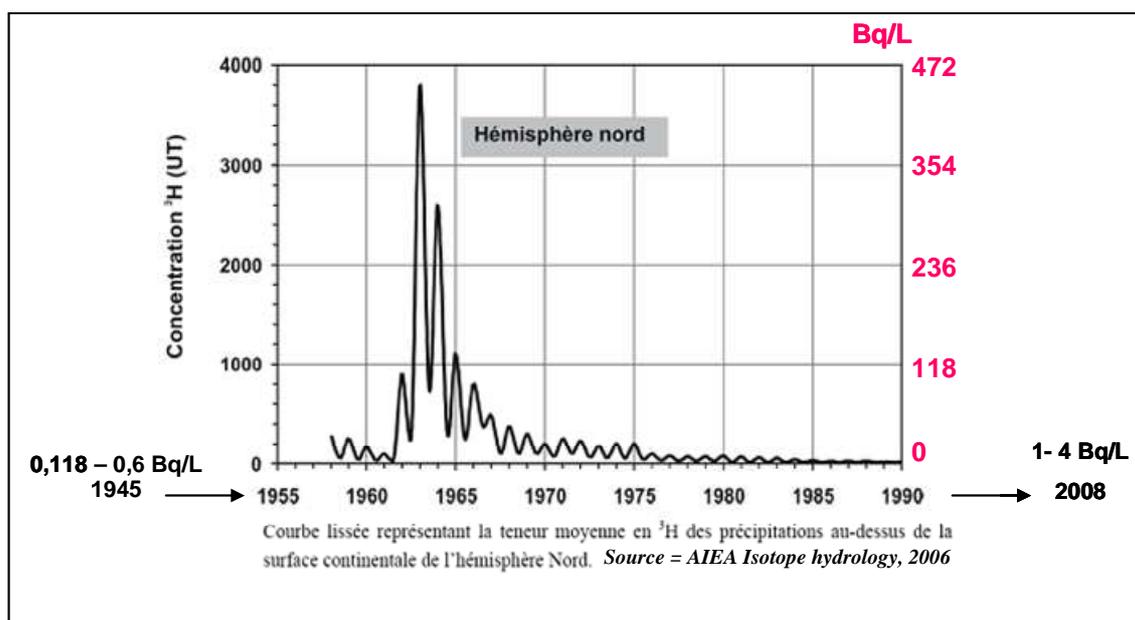


Figure 5.1 - Évolution de la teneur en tritium dans l'eau de pluie de 1958 à 1990 exprimée en Unité Tritiée (UT) et en Bq/L. Les gammes d'activités correspondant d'une part au bruit de fond naturel cosmogénique antérieur aux essais nucléaires, d'autre part au niveau actuel, ont été ajoutées à la courbe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

¹Les données compilent des résultats obtenus dans de l'herbe et dans des aiguilles de pin, sans distinction de matrice (Miljevic *et al.*, 2000). ²Dans 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 : 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 ; 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.HGLTOV.3RSP5L.GBCIBD.2. ; 24 Morris 2006

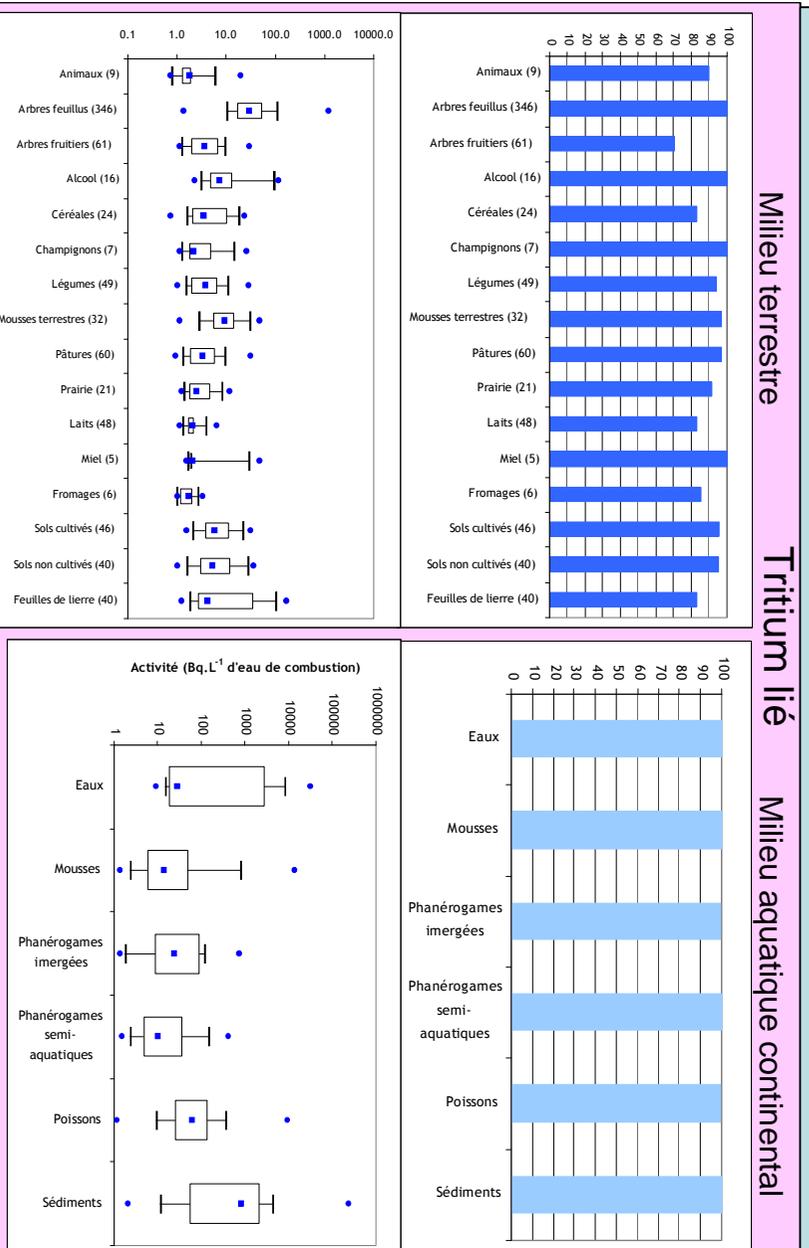
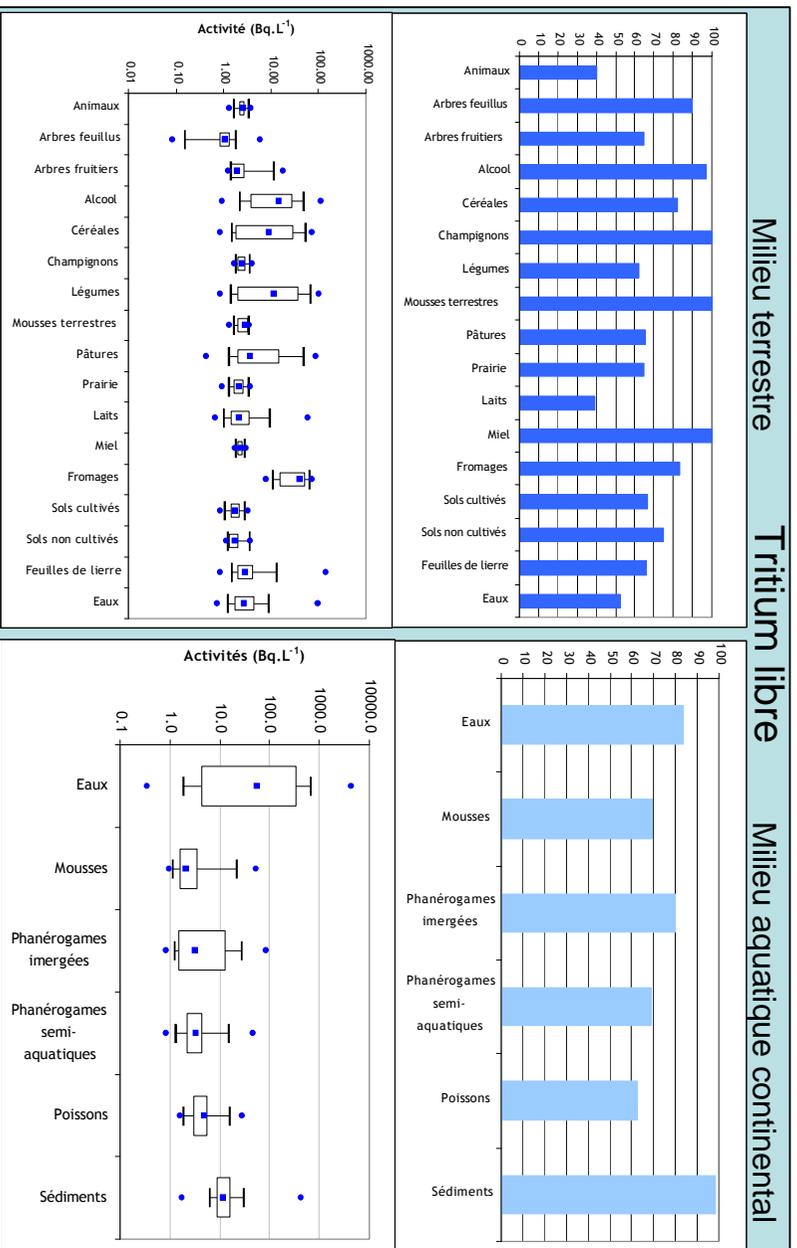


Figure 5.2 - Pourcentage des résultats d'analyse du tritium libre (HTO, en haut) et du tritium lié (OBT, en bas) supérieurs à la limite de détection dans les échantillons du milieu terrestre (à gauche) ou du milieu aquatique continental (à droite) et « Boîtes à moustaches » (voir explication en annexe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

5.1.3.2. Diminution des activités de tritium

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 biologiques³ 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 effective⁴ 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

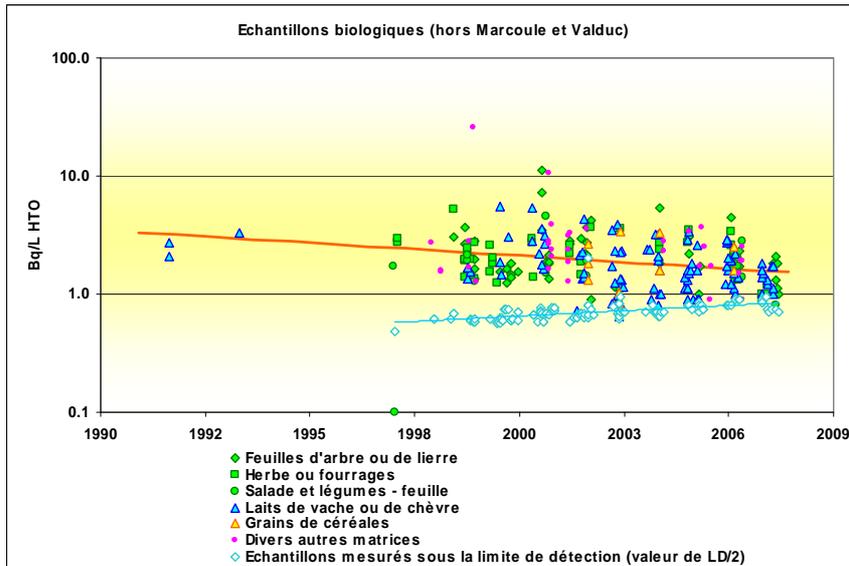
³ Herbe, feuilles d'arbres, feuilles de lierres, blé, salade, lait...

⁴ La période effective est déduite de l'ajustement d'une fonction exponentielle aux données d'une chronique de mesure, soit : $[^3\text{H}](t) = [^3\text{H}](t=0) \cdot 2^{-t/T_{\text{eff}}}$; en général, les coefficients de détermination R^2 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 artéfacts 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).

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.

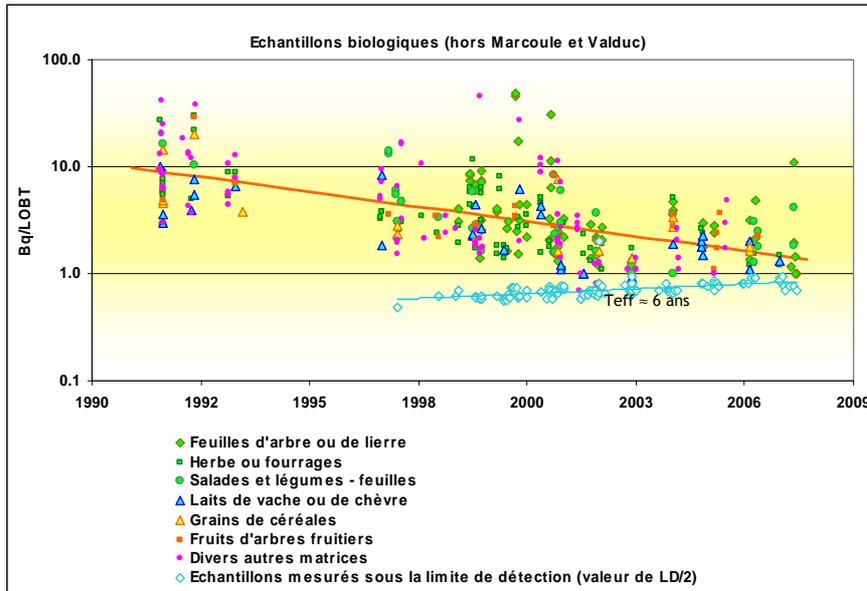
Cette conclusion, tirée d'observations faites sur des échantillons divers émanant de différentes stations, ne doit être considérée que comme une tendance générale. Elle mériterait d'être confortée par des observations plus fines, comprenant davantage de résultats de mesure supérieures aux limites de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

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).



a) Tritium libre (Bq/L d'eau de distillation).

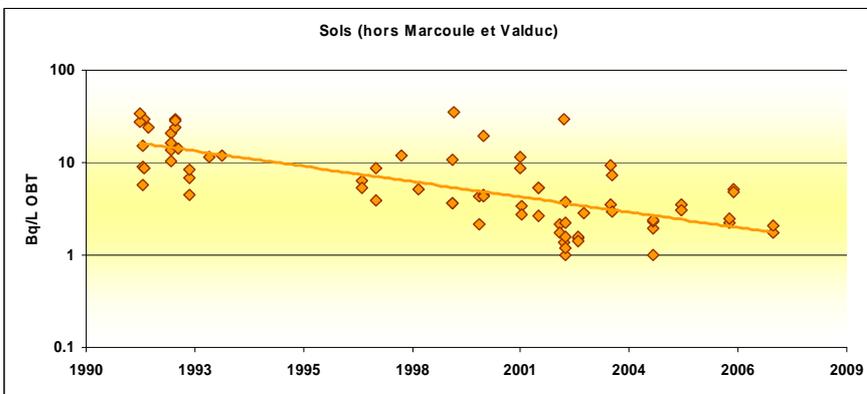
Environ 410 échantillons dont 64 % présentent des valeurs supérieures au seuil de détection. Valeurs à la date de mesure.



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).

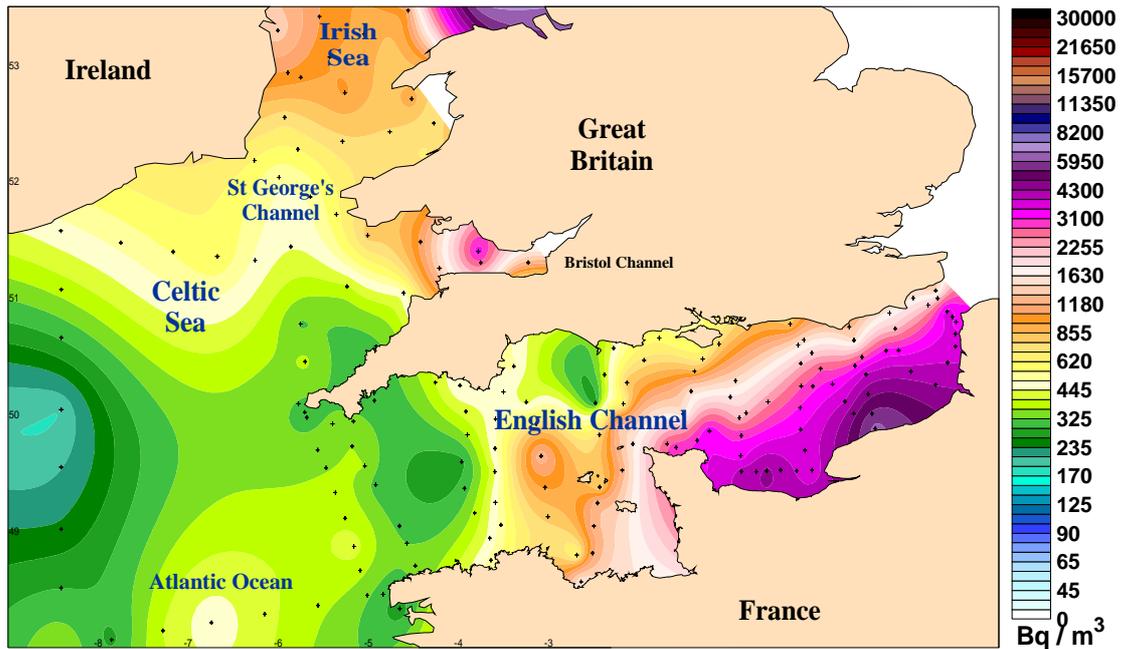
Environ 100 échantillons dont 100 % présentent des valeurs supérieures au seuil de détection. Valeurs à la date de mesure.

5.2. CONCENTRATIONS CARACTÉRISTIQUES EN MILIEU MARIN

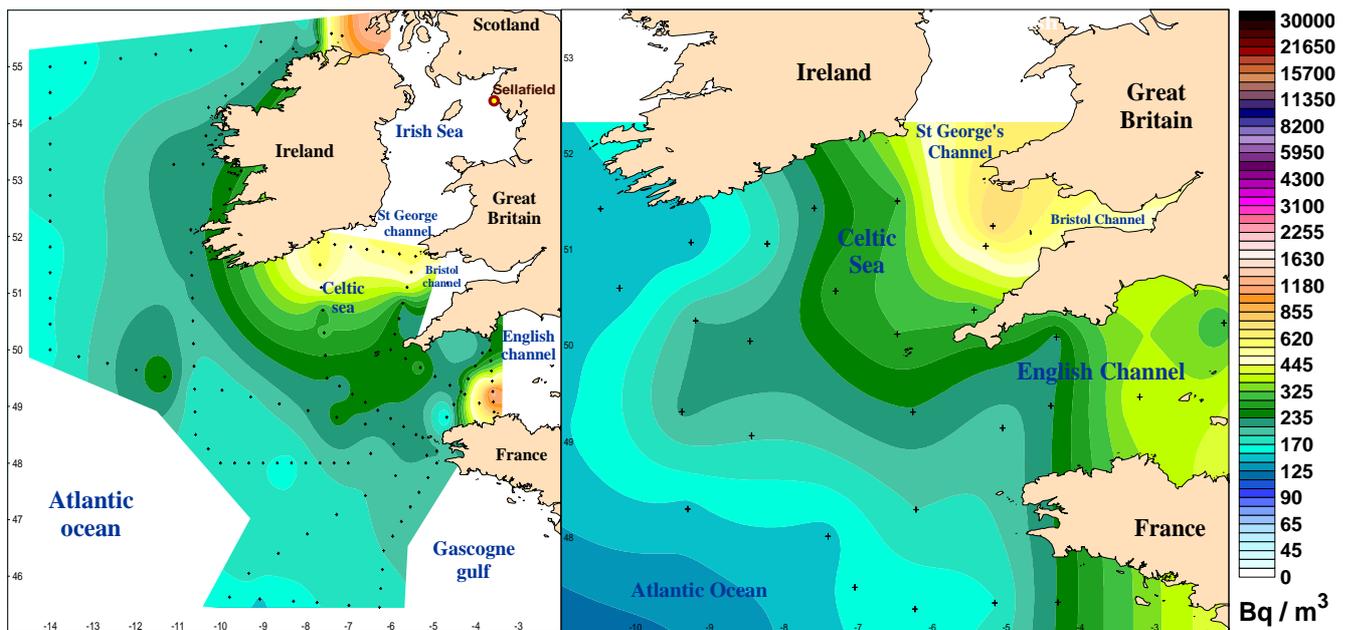
5.2.1. Niveaux actuels et évolutions de la concentration de tritium dans les océans

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.



a)



b)

c)

Figure 5.4 - Activités du tritium dans les eaux de surface de l'Atlantique nord-est, a : septembre 1994, b : juillet 1998, c : mars 2000 (Bailly du Bois et al., 1999, 2002)

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 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ en 2002, et de 101 à 125 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 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 ($215 - 377 \text{ Bq.m}^{-3}$).

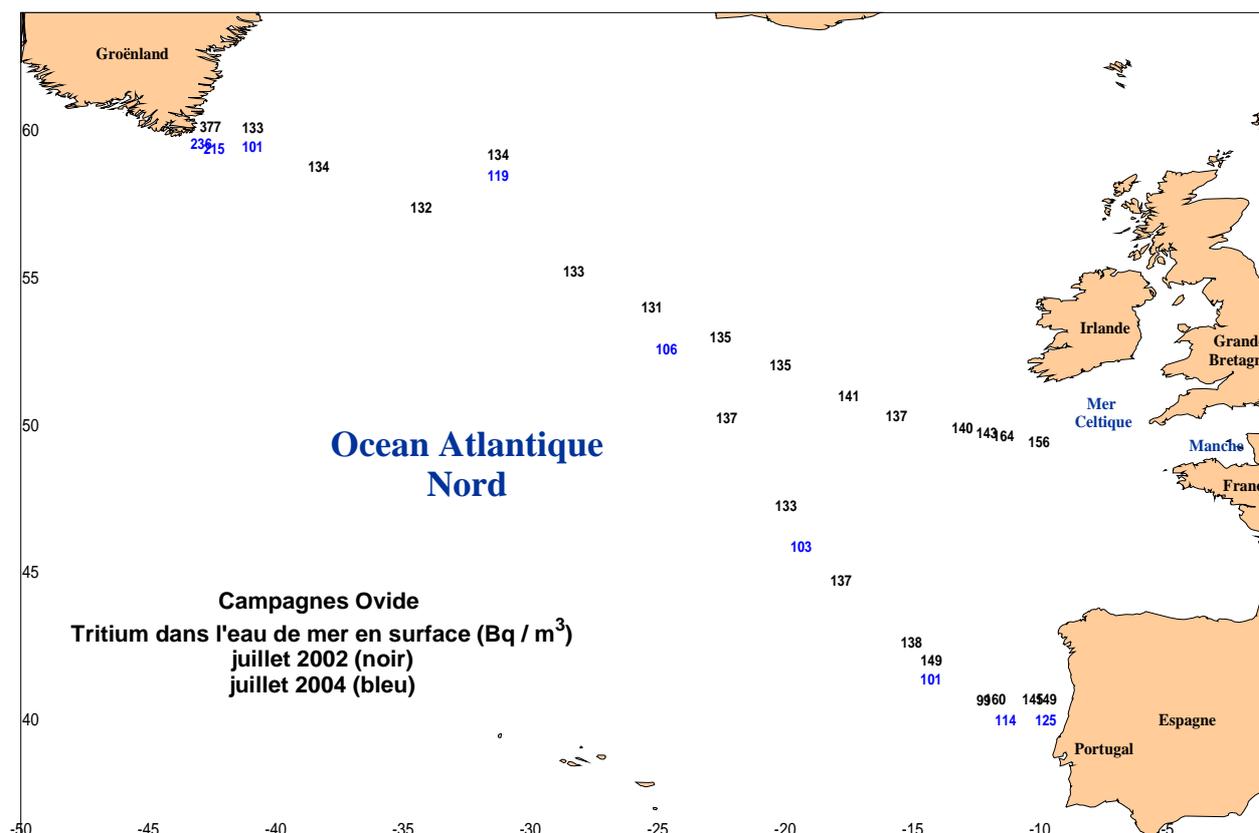


Figure 5.5 - Mesures de l'activité du tritium dans les eaux de surface de l'Atlantique Nord, campagnes OVIDE 2002 et 2004

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 2.10^{15} 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).

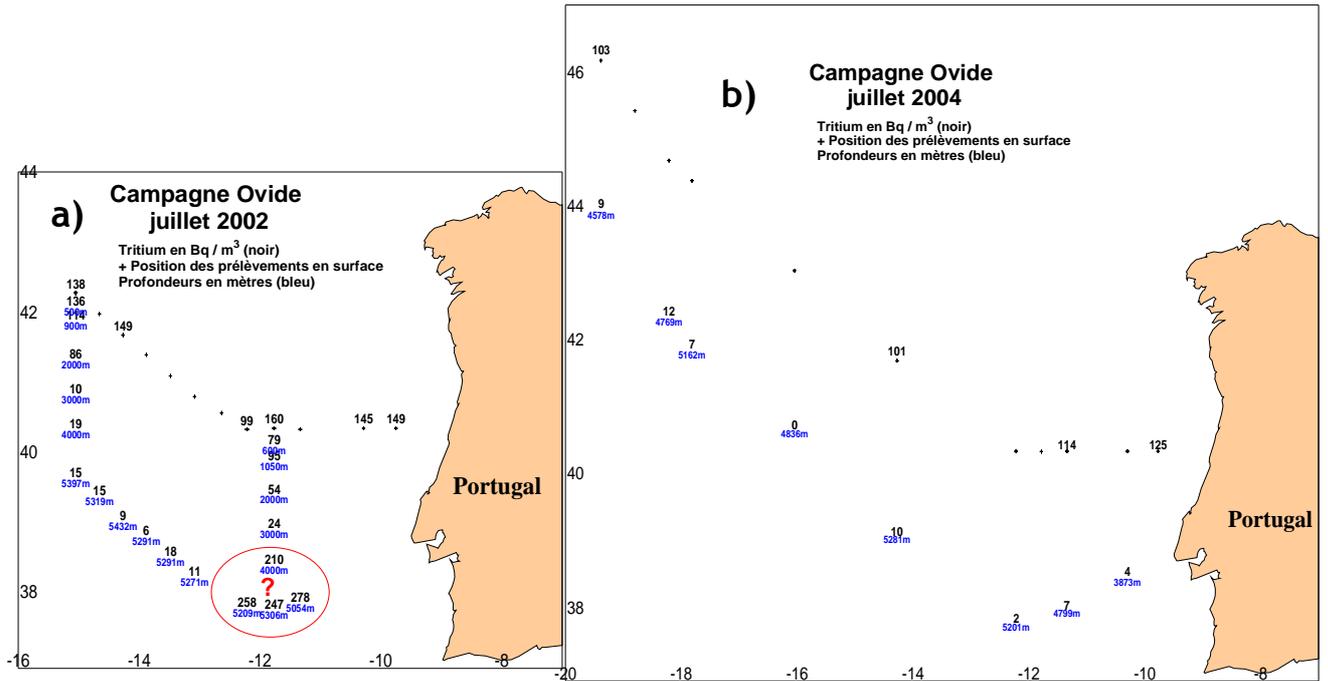


Figure 5.6 - Activité du tritium dans l'eau de mer en profondeur au large du Portugal, campagnes OVIDE 2002 (a) et 2004 (b). 4 points de prélèvement de la campagne 2002 (dans l'ensemble rouge) montrent des concentrations de tritium nettement plus élevées que celles des autres points, non retrouvées lors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

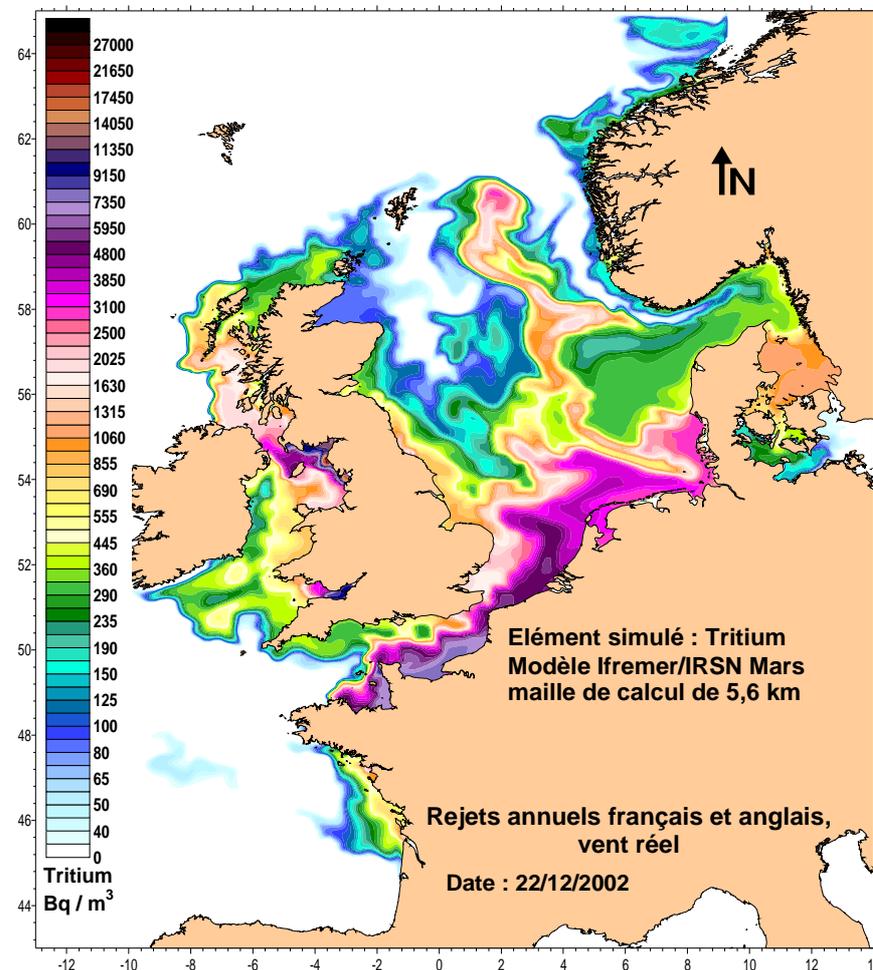


Figure 5.7 - Simulation de la dispersion du tritium rejeté par les installations nucléaires françaises et anglaises.

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 $6,5 \text{ Bq.L}^{-1}$.

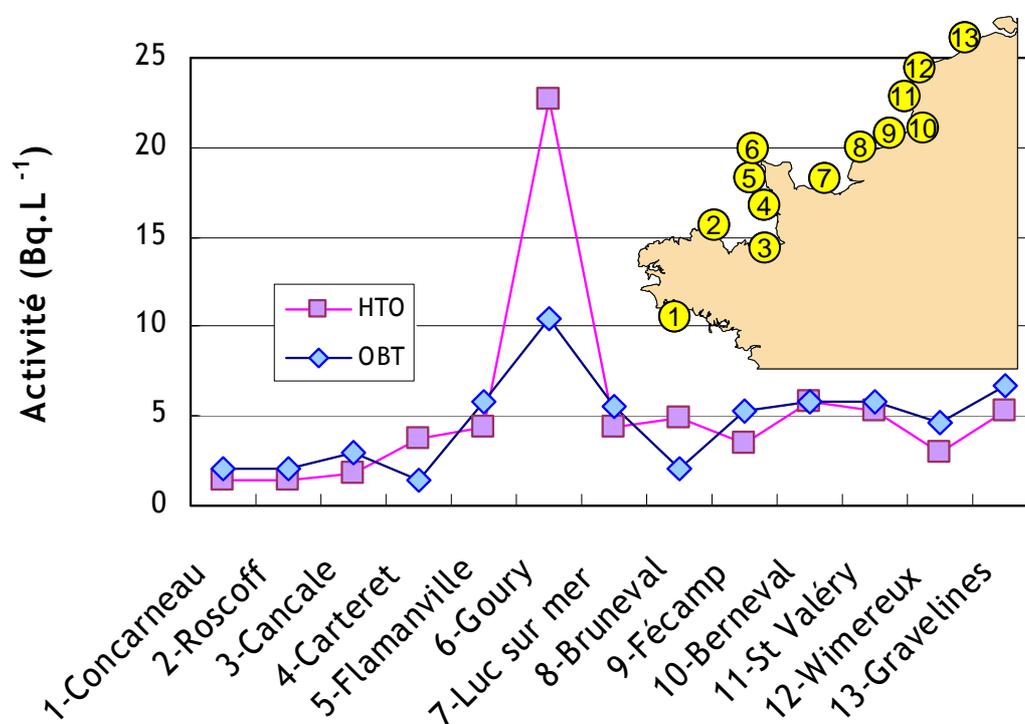


Figure 5.8 - Concentrations en tritium libre (HTO) et en tritium organiquement lié (OBT) mesurées dans l'eau de mer (Bq/L) et les algues (Bq/L eau de combustion) entre Concarneau et Gravelines au cours des années 2001-2002 (données IRSN).

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 $1,1 \pm 0,3$.

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

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 (rémanence 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.

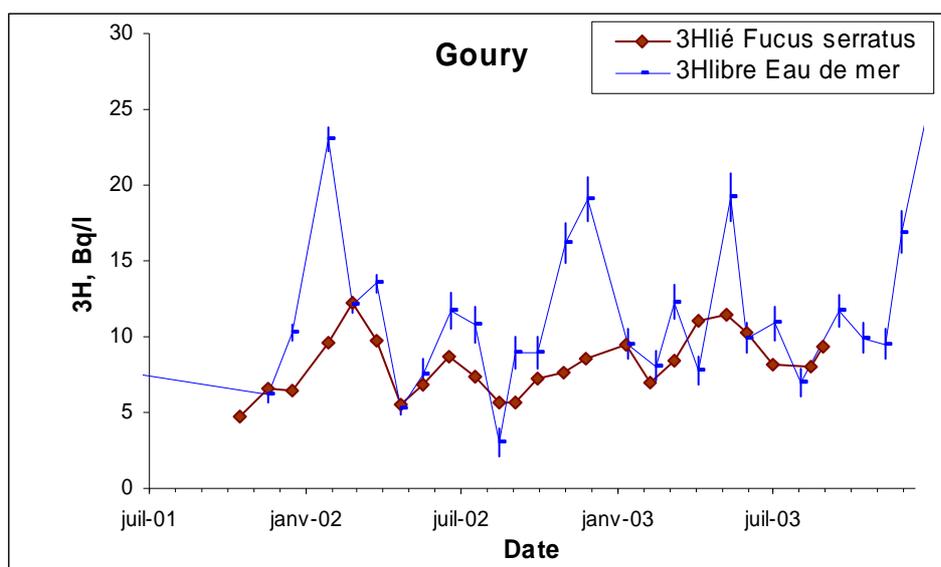


Figure 5.9 - Évolution des activités volumiques du tritium organiquement lié dans *Fucus serratus* (Bq/L eau de combustion) et du tritium libre dans l'eau de mer (Bq/L) à Goury (données IRSN).

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 ^{137}Cs (Fiévet and Plet, 2003) et le ^{14}C (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 $37\,800 \text{ Bq.kg}^{-1}$ 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 $6 \cdot 10^2 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, $2 \cdot 10^3 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$, et $10^5 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ 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.

5.2.3. Synthèse sur le milieu marin

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.

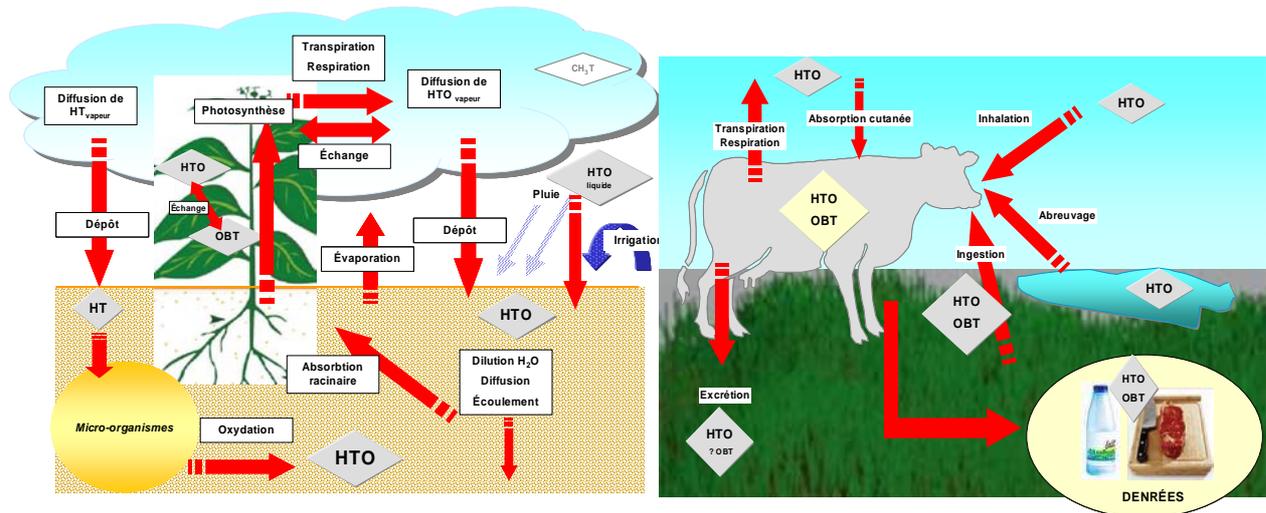


Figure 6.1 - Principaux mécanismes d'évolution des formes tritiées en milieu terrestre aux interfaces air-sol-végétaux et chez les animaux incluant le transfert aux produits alimentaires.

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/m^3 , 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

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).

transformation en HTO est très lente ou qu'un apport significatif de tritium sous forme de HT et de CH₃T se poursuit encore actuellement.

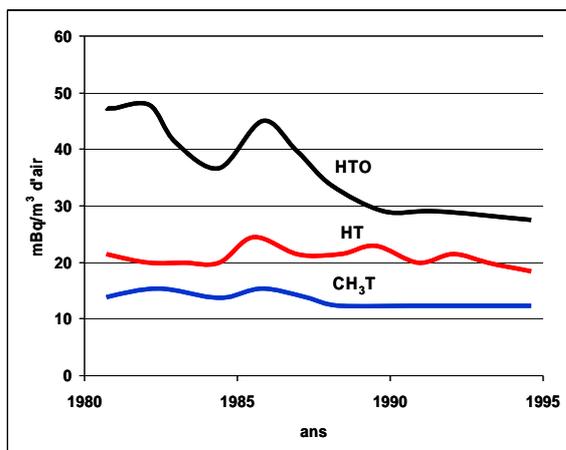


Figure 6.2 - Activités volumiques des formes tritiées dans l'atmosphère mesurées au Japon par Okai *et al.* (1999).

Le méthane tritié est peu connu ; les valeurs de référence déterminées pour la disparition par oxydation du méthane stable (CH₄) 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 × 10⁻⁵ à 3,7 × 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).

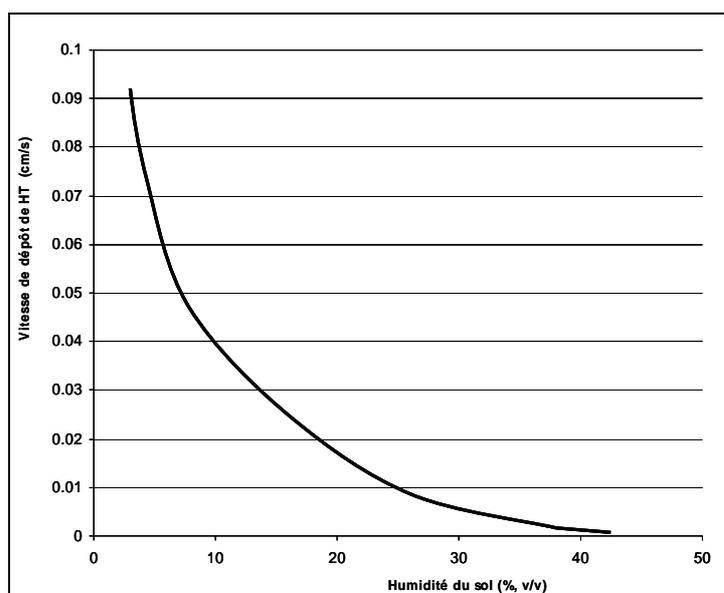


Figure 6.3 - Variation de la vitesse de dépôt de l'hydrogène tritié (Murphy, 1990) en fonction de l'humidité du sol. Pour un sol d'humidité volumique moyenne (15 %), cette vitesse serait d'environ 3×10^{-4} m/s.

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 et la phase de réémission et, ne conduit pas forcément à une valeur majorante 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.

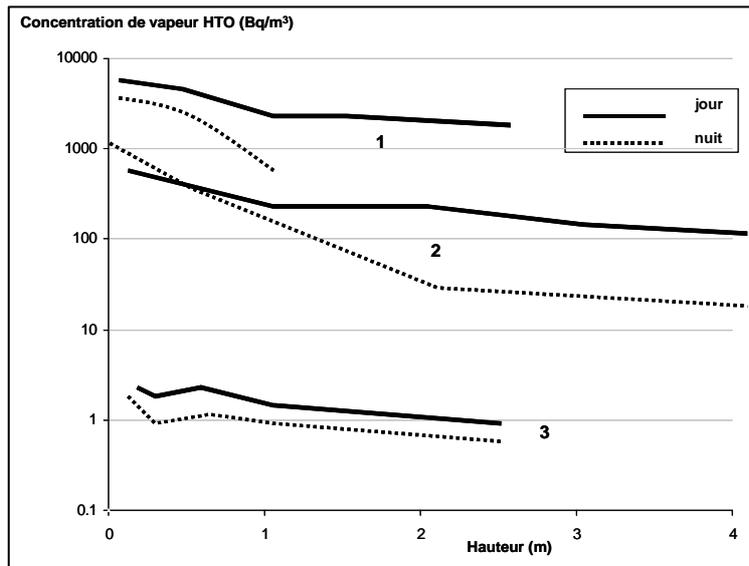


Figure 6.4 - Variation du gradient de HTO à différentes hauteurs au dessus du sol après un rejet expérimental prolongé de HT dans l'air. D'après :

- (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 ⁶ UFOTRI ; 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 H₂O 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 Vandellos (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).

La fraction d'eau tritiée qui s'infiltré 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

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

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 LBNL ⁷ 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).

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

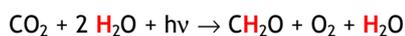
Fonctionnement hydrique du végétal. L'absorption de l'eau du sol par le végétal s'effectue par les racines, essentiellement par l'intermédiaire des poils absorbants et des zones apicales. La majeure partie de l'eau absorbée ne fait que transiter dans le végétal et s'échappe de la plante sous forme de 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 schématique 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 Calvin ⁸.

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) :

- 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.

⁸ Dans le cycle de Calvin - Benson - Bassham (cycle RPP) la première étape est la carboxylation du ribulose 1,5 bisphosphate pour former le 3-phosphoglycérate. Cette réaction est catalysée par la ribulose 1,5-bisphosphate 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.

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) ⁹	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 : $HTO_{\text{eau des végétaux}} / HTO_{\text{vapeur d'eau atmosphérique}}$
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

⁹ La majorité des végétaux, tels que les arbres et la plupart des plantes spontanées des zones tempérées ou froides, sont dits « C3 » car, lors de la photosynthèse, la première étape du cycle de Calvin passe par la formation de composés possédant 3 atomes de carbone. D'autres plantes, moins abondantes (notamment des graminées tropicales, comme la canne à sucre, certaines plantes halophytes ainsi que le maïs et le sorgho) sont dites « C4 » car avant les réactions du cycle de Calvin, ces plantes forment une molécule à 4 atomes de carbone.

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.

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

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.

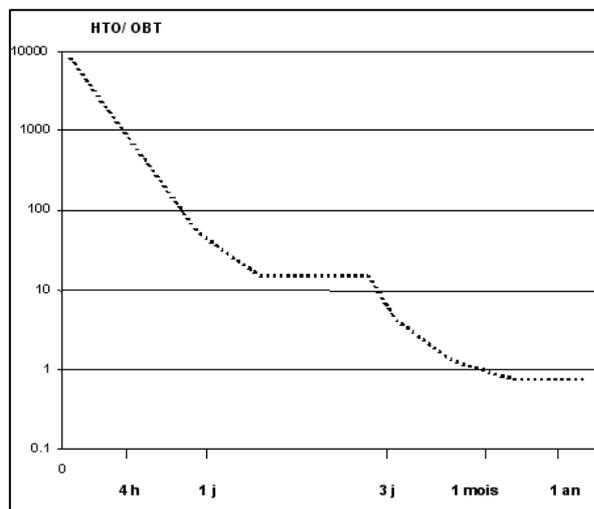


Figure 6.5 - Évolution calculée du rapport HTO/OBT de végétaux après exposition à un rejet ponctuel d'hydrogène tritié (HT) (Verlade et Pelardo, 2001).

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 volumique¹⁰ 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).

¹⁰ 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).

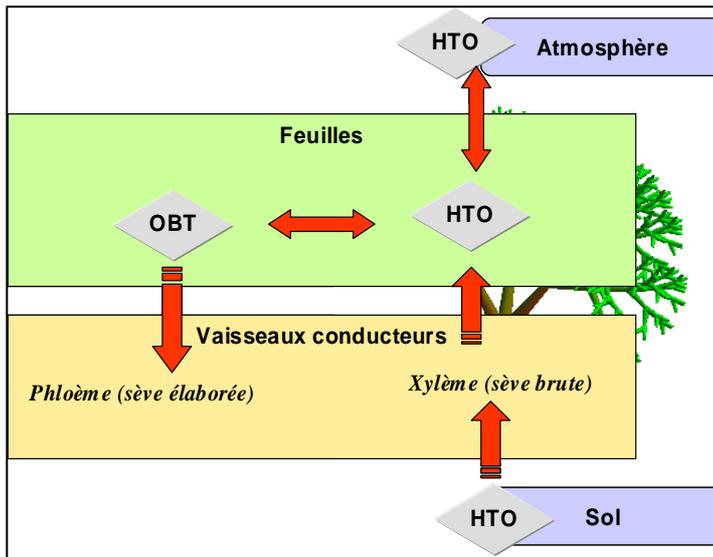


Figure 6.6 - Modélisation simplifiée des transferts de tritium dans les arbres (Strack et al., 2005).

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.

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 internationales¹¹ (Galeriu *et al.*, 2001 ; 2005 ; 2007, 2009).

Deux processus permettent l'incorporation de tritium dans les animaux : l'ingestion – affouragement et abreuvage – 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 retenus 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.

¹¹ Laboratoires de Roumanie, Royaume Uni, U.S.A. et Belgique.

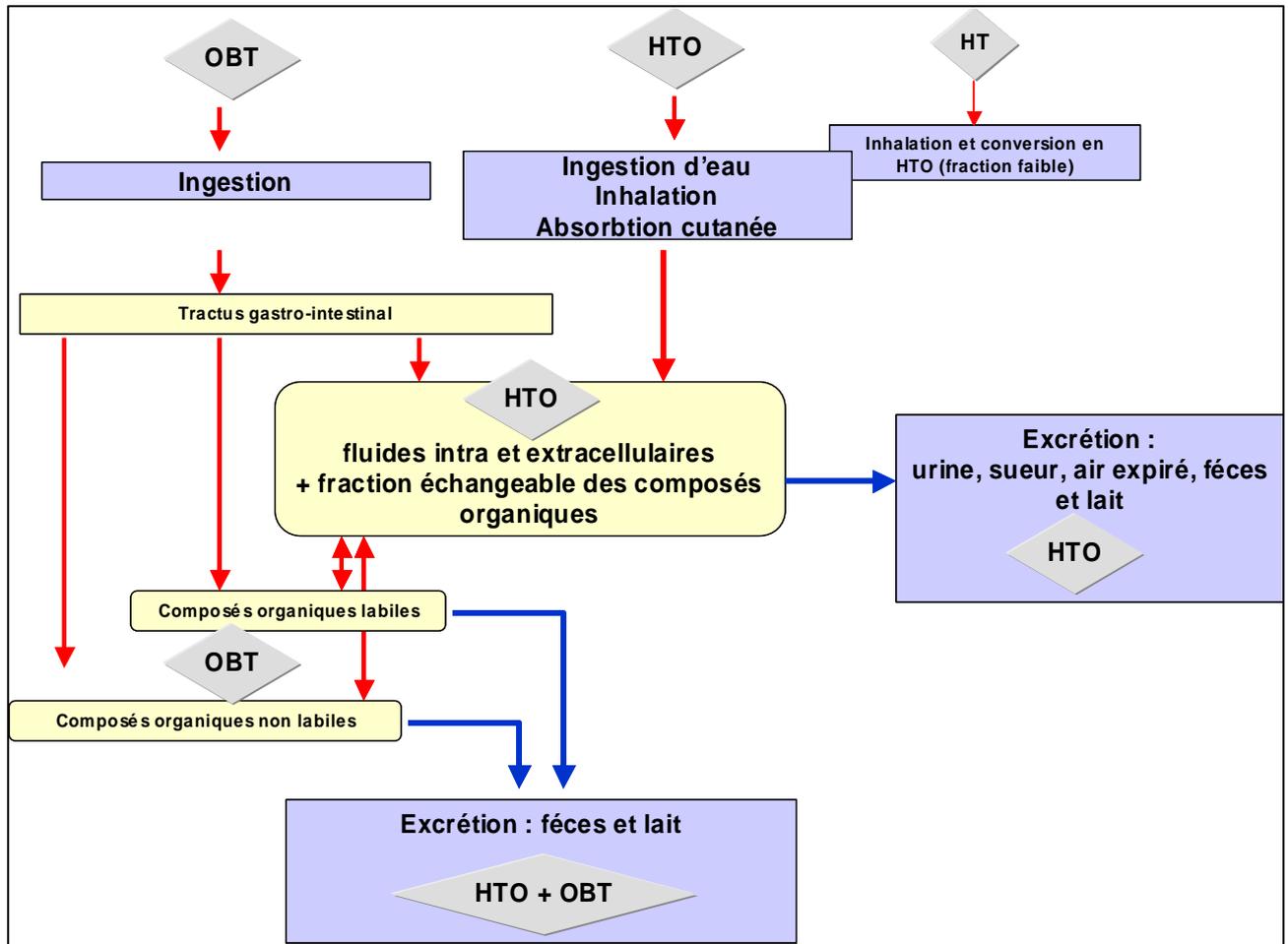


Figure 6.7 - Transferts de tritium aux produits d'origine animale, d'après Thorne, 2003.

6.2. ÉCOSYSTÈMES AQUATIQUES (EAUX DOUCES)

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).

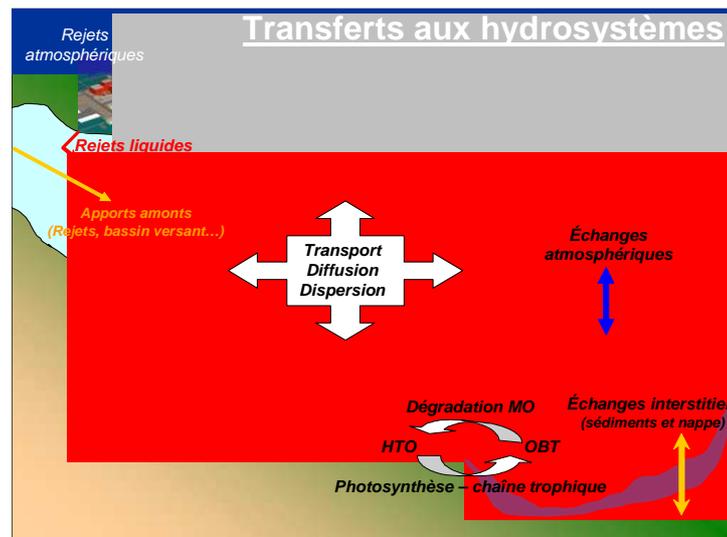


Figure 6.8 - Principaux mécanismes de dispersion et de transfert du tritium sous forme libre au sein des hydrosystèmes.

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 $OBT_{\text{truite}}/HTO_{\text{eau}}$ 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 du 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 1^{er} 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 $4,0 \cdot 10^7$ Bq.km⁻².j⁻¹ (TE-SEA), $2,0 \cdot 10^7$ Bq.km⁻².j⁻¹ (TRANSAT 1) et $1,3 \cdot 10^7$ Bq.km⁻².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 $2,4 \cdot 10^7$ Bq.km⁻².j⁻¹ pour la surface correspondant à la baie de Seine (4400 km²), 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 (CH₃T). 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 CH₃T 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 tritiée 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, et 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 $OBT_{\text{organisme}}/HTO_{\text{eau}}$ 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 BIOMOV5 et BIOMOV5 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 II 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 à 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 spécifique ¹² 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 ;

¹² Hypothèse selon laquelle le rapport isotopique $^3\text{H}/^1\text{H}$ reste le même dans tout ou partie des compartiments de l'environnement.

- 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.

7.1.1.3. Modélisation des transferts de tritium aux productions animales

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.

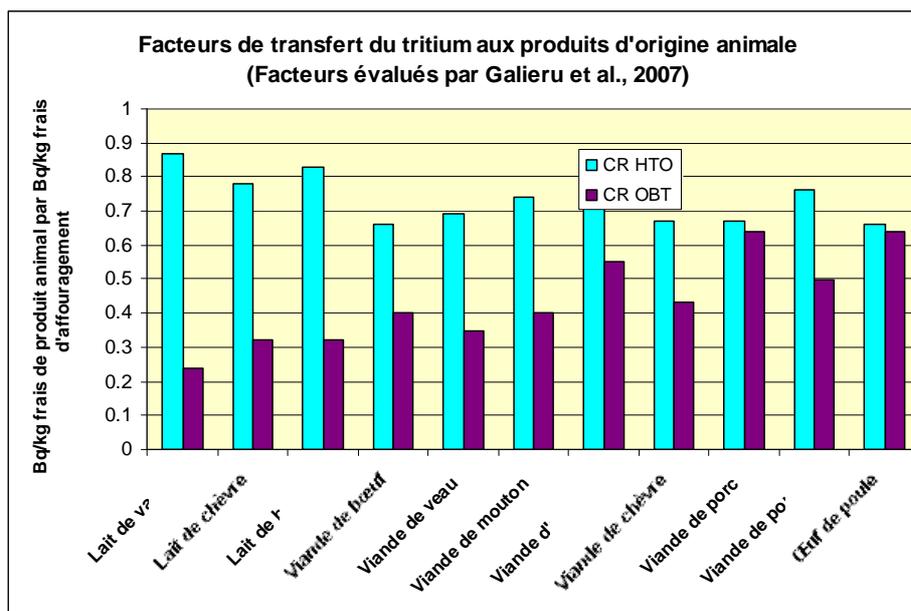


Figure 7.1 - Valeurs calculées de facteurs de transfert aux produits d'origine animale (d'après Galeriu *et al.*, 2007).

7.1.2. Description succincte du modèle TOCATA

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 → 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.

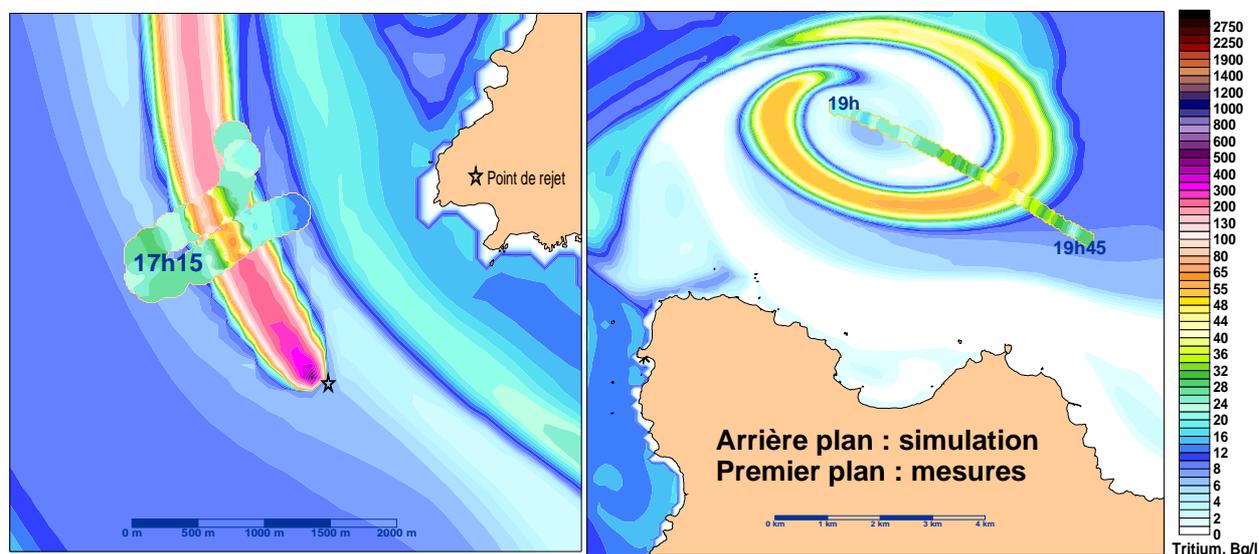


Figure 7.2 - Exemple de comparaison modèle / mesures utilisant le tritium dissous comme traceur des rejets dans l'environnement proche d'un émissaire (Bailly du Bois *et al.*, 2006)

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 tritié (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.

$$[TFWT]_{fish} = H_{fish} \cdot [HTO]_{wat} \quad \text{Équation 3}$$

Avec :

$[TFWT]_{fish}$ activité massique du tritium dans l'eau libre des poissons ($Bq.kg^{-1}$) ;

H_{fish} teneur en eau du poisson ($0,78 l.kg^{-1}$) ;

$[HTO]_{wat}$ 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).

$$[TFWT]_{fish}(t) = H_{fish} \cdot [HTO]_{wat}(t) \quad \text{Équation 4}$$

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 $0,95 l.kg^{-1}$) ;

$[HTO]_{wat}(t)$ 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 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).

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 <i>et al</i> , 2005
OURSON (EDF)	France	Ciffroy <i>et al</i> , 2006
BIOCHEM	Allemagne	Baumgärtner, 2000 et 2005 Baumgärtner et Donhaerl, 2004 Baumgärtner et Kim, 2000

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 $[OBT]_{\text{organisme}}/[HTO]_{\text{wat}}$ 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 résultats 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 (OURSON¹³ et AQUATRIT), la dynamique de la formation d'OBT ainsi obtenue est plus proche de celle observée.

7.3. SYNTHÈSE SUR LES MODELES 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.

¹³ 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)

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 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 ^{60}Co ou du ^{137}Cs . 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 ^{137}Cs ou du ^{60}Co . 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 γ 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 ^{60}Co .

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 :

$$DCC_{i,o} = CR_{i,o} DCC_{i,o}^{\text{int}} + \sum_{\text{medium}} OF_o^{\text{medium}} DCC_{i,o}^{\text{ext-medium}}$$

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.

$DCC_{i,o}^{\text{ext-medium}}$ 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.

$CR_{i,o} = \frac{C_{i,o}}{C_i^{\text{medium}}}$, 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/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
Éphémère (sur l'eau)	2.85E-06	3.07E-06	nd	3.70E-09	5.33E-07
Éphémère (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
	μGy/h par Bq/kg		μGy/h par Bq/kg	μGy/h par Bq/l	μGy/h par Bq/m ³
<i>Phytoplancton</i>	<i>nd</i>	<i>3.29E-06</i>	<i>0.00E+00</i>	<i>0.00E+00</i>	<i>sans objet</i>
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) :

$$D_{\beta} = 5,76 \cdot 10^{-7} \times \mathcal{E}_{\beta} \times C$$

Avec D_{β} , débit de dose en Gy/h ; \mathcal{E}_{β} , énergie moyenne des électrons émis par le tritium (0,00569 MeV) ; C, activité volumique en tritium (Bq/mL) ; $5,76 \cdot 10^{-7}$, 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 des acentriques, 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 $5 \cdot 10^8$ 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 (5 10⁸ 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 10⁶ 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 et 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 5.10⁵ 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 5.10⁶ 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 ($3,7 \cdot 10^7$ 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.

Tableau 8.5 - Toxicité du tritium chez les invertébrés aquatiques. EC_x et LOEDR donnés en mGy/j (µGy/h)

Référence	Espèce	Effet étudié	Critère d'effet	Débit de dose mGy/j (µGy/h)
Invertébrés d'eau douce				
(Gudkov et Kipnis, 1996)	<i>Daphnia magna</i> (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)	<i>Pila luzonica</i> (escargot)	Histopathologies	LOEDR	3 (12.5)
Invertébrés marins				
(Abbott and Mix, 1979)	<i>Pollicipes polymerus</i> (pouce-pied)	Effets sur le développement	EDR ₅₀ index de mue des larves post-stade I	^a 1 (42)
(Hagger et al., 2005)	<i>Mytilus edulis</i> (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 et al., 2005)	<i>Mytilus edulis</i> (moule bleue)	Effets sur l'ADN hémocytaire (stade adulte)	LOEDR	0,3 (1,2)
(Réal et al., 2004.)	<i>Ophryotrocha diadema</i> (annelide)	Performance reproductive Survie	EDR ₂₀ survie LOEDR survie EDR ₃₀ reproduction LOEDR reproduction	175 (7292) 175 175 175
(Higuchi et al., 1980)	<i>Artemia salina</i> (artémie)	Fécondité	LOEDR EDR ₅₀	270 (11250) Entre 270 et 1350 (52250)

^a : débit de dose calculé selon l'équation 1

8.4.1.2. Vertébrés aquatiques

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 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 écloses (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 radiorésistante, 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 spermatozoïdes et spermatozoïdes étant de 60 jours, il est vraisemblable que tout le tritium n'ait 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. EDR_x 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	20 (833)
			EDR ₅₀ 11 semaines après l'injection d'antigènes	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	100 (4167)
			EDR ₆₀ nombre spermatogonies primaires lb	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>Oryzias latipes</i> (medaka)	Fécondité et fertilité (croisées) pour des adultes exposés au stade d'embryons	LOEDR capacité reproductive (femelles irradiées, mâles témoin)	85 (3542)
			EDR ₅₀ capacité reproductive (femelles irradiées, mâles témoin)	340 (14167)
			NOEDR taux d'éclosion	3400 (141667)
			LOEDR capacité reproductive (mâles irradiés, femelles témoin)	85 (3542)
			EDR ₅₀ capacité reproductive (mâles irradiés, femelles témoin)	500 (20833)
			LOEDR taux d'éclosion (mâles irradiés, femelles témoin)	340 (14167)
			EDR ₅₀ taux d'éclosion (mâles irradiés, femelles témoin)	850 à 1700
(Suyama et al., 1981)	Medaka	Effets cytogénétiques	LOEDR fréquence de mitoses aberrantes	550 (20833)

8.4.2. Toxicité du tritium pour les organismes terrestres végétaux et animaux

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), concernent 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 μ Gy/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 Fliedner, 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 μ Gy/h, et avec une LDR₅₀ correspondante de 60 μ Gy/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 μ Gy/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 μ Gy/h à 1250 μ Gy/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 13^{ème} 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. EDR_x et LOEDR donnés en mGy/j (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 <i>et al.</i> , 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 <i>et al.</i> , 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 vertébrés. 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 µGy/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 µGy/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 µGy/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 µGy/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 µGy/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 µGy/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 µGy/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 (Gudkov and 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.

8.4.4. Analyse de la toxicité du tritium à partir de l'établissement de relations dose-effet pour les espèces

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 FREDERICA¹⁴ 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 8.9 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 (*Crassostreas 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

¹⁴ 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.).

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.

Tableau 8.8 - Valeurs des débits de dose entraînant 10% d'effet (EDR₁₀ en µGy/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 (µGy/h)	Erreur d'estimation
Gilbin et al. 2008	Crustacé	Invertébré	<i>Daphnia magna</i>	Mortalité	16 797	53 263
Marshal, 1962	Crustacé	Invertébré	<i>Daphnia pulex</i>	Morbidité	277 634	8 676,6
Hingston et al., 2004	Crustacé	Invertébré	<i>Porcellio scaber</i>	Reproduction	1 030	1 245
Hertel-Aas et al., 2007	Annélide	Invertébré	<i>Eisenia foetida</i>	Reproduction	3 369	1 130
Baptist et al., 1976	Mollusque	Invertébré	<i>Mercenaria mercenaria</i>	Mortalité	49 520	119 778
Knowles and Greenwood, 1994	Annélide	Invertébré	<i>Ophryotrocha diadema</i>	Mortalité	2 360	1 268
Dugle, 1986	Plante	Plante	<i>Abies balsamea</i>	Morbidité	2 945	1 524
Alexeyeva and Belonozhko, 1981	Plante	Plante	<i>Fagopyrum esculentum</i>	Reproduction	40 151	8 252
Sparrow et al., 1965	Plante	Plante	<i>Pinus rigida</i>	Morbidité	710	39
Zolotova and Shcherbakov, 1987	Plante	Plante	<i>Triticum monococcum</i>	Reproduction	9 760	5 373,2
Rönnbäck, 1983	Mammifère	Vertébré	<i>Mus musculus</i>	Reproduction	26	76
Egami et al., 1981	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	20 881	61
Knowles, 1999	Poisson	Vertébré	<i>Pleuronectes platessa</i>	Reproduction	47	56
Woodhead, 1977	Poisson	Vertébré	<i>Poecilia reticulata</i>	Reproduction	516	791
Erickson, 1978	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	24	0,40
Erickson, 1976	Mammifère	Vertébré	<i>Sus crofa</i>	Reproduction	3,6	2,6
Cooley and Nelson, 1970	Mollusque	Invertébré	<i>Physa heterostropha</i>	Reproduction	55 831	8 002
Bonham and Donaldson, 1972	Poisson	Vertébré	<i>Oncorhynchus tshawytscha</i>	Reproduction	3 518	104
Phillips and Coggle, 1988	Oiseau	Vertébré	<i>Larus ridibundus</i>	Reproduction	3 696	3 063
Phillips and Coggle, 1988	Oiseau	Vertébré	<i>Chicken</i>	Reproduction	13 932	8 191

Tableau 8.9 - Valeurs des débits de dose donnant 10% d'effet (EDR₁₀ en µGy/h) et erreur d'estimation associée pour les espèces non-humaines exposées de manière chronique au tritium sous forme HTO. Ce tableau présente l'ensemble des résultats obtenus suite à la revue critique de littérature réalisée pour le tritium dans ce rapport. Les valeurs les plus basses par espèce sont en caractères gras. Seules cinq espèces sont représentées.

Référence	Groupe taxonomique	Niveau trophique	Espèce	Catégorie d'effet	EDR ₁₀ (µGy/h)	Erreur d'estimation
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1993	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	36	123
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1993	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Morbidité	33250	3147
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	2831	2591
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	5225	3591
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	8389	1804
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	6917	4322
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	5812	1548
Hyodo-Taguchi and Etoh, 1986	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	7060	4004
Etoh and Hyodo-Taguchi, 1983	Poisson	Vertébré	<i>Oryzias latipes</i>	Reproduction	764	291
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	18	46
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	27	36
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	39	59
Pietrzak-Flis and Wasilewska-Gomulka, 1984	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	25	45
Laskey <i>et al.</i> , 1973	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	1174	579
Laskey <i>et al.</i> , 1973	Mammifère	Vertébré	<i>Rattus norvegicus</i>	Reproduction	1229	359
Nelson, 1971	Mollusque	Invertébré	<i>Crassostrea gigas</i>	Morbidité	117	0,13
Hagger <i>et al.</i> , 2005	Mollusque	Invertébré	<i>Mytilus edulis</i>	Morbidité	1,28	1,47
Hagger <i>et al.</i> , 2005	Mollusque	Invertébré	<i>Mytilus edulis</i>	Morbidité	0,009	0,052
Hagger <i>et al.</i> , 2005	Mollusque	Invertébré	<i>Mytilus edulis</i>	Morbidité	0,701	0,060
Hagger <i>et al.</i> , 2005	Mollusque	Invertébré	<i>Mytilus edulis</i>	Morbidité	0,004	0,013
Jha <i>et al.</i> , 2005	Mollusque	Invertébré	<i>Mytilus edulis</i>	Morbidité	22	16
Gudkov and Kipnis, 1996	Crustacé	Invertébré	<i>Daphnia magna</i>	Reproduction	0,29	1,62
Gudkov and Kipnis, 1996	Crustacé	Invertébré	<i>Daphnia magna</i>	Reproduction	0,39	0,91
Gudkov and Kipnis, 1996	Crustacé	Invertébré	<i>Daphnia magna</i>	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 stresser (*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_5 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_5 estimée à partir de données d'exposition gamma externe mais pouvant être appliqué 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_5 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.

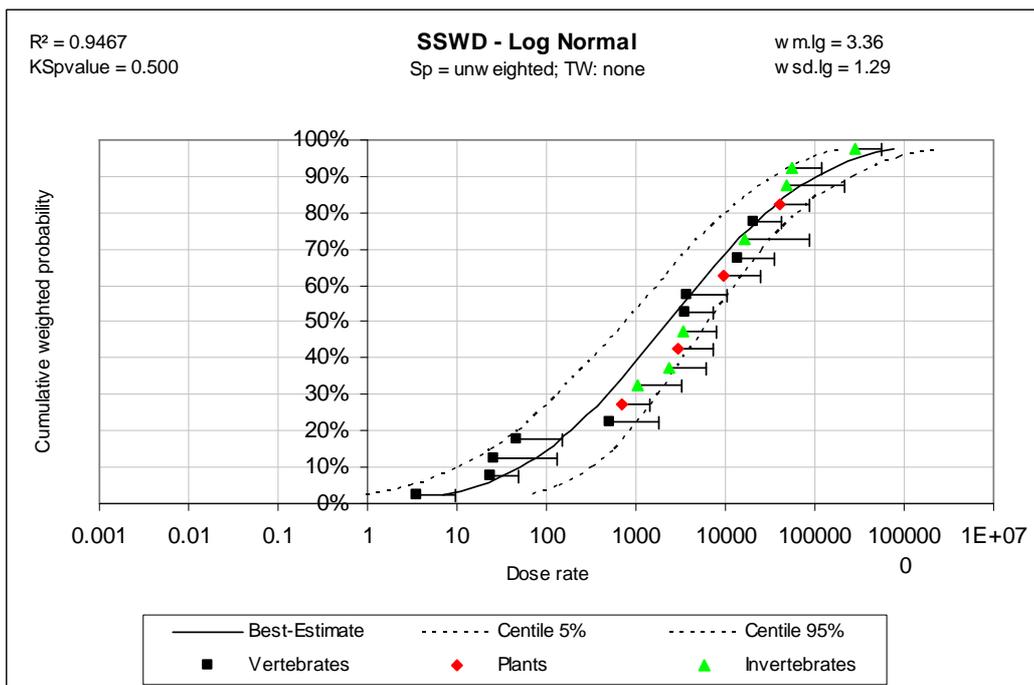


Figure 8.1 - Distribution de la sensibilité des espèces d'un écosystème générique (applicable pour tout écosystème terrestre, marin ou aquatique continental) pour les situations d'exposition chronique par irradiation externe par des émetteurs γ (PROTECT, 2008). La valeur estimée d' HDR_5 est $17 \mu\text{Gy/h}$ 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.

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*).

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 conservative, 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 partie 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 dans le compartiment végétal. Le fait d'observer parfois des facteurs de concentration¹⁵ 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 agro-climatiques locales, durée et intensité de

¹⁵ 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/d'eau de pluie, ou à défaut Bq/L de HTO du végétal)

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 émise 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.

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 (laits, 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 $OBT_{\text{organisme}}/HTO_{\text{eau}}$ 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.

10. 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 Caceres (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 la 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 modelling 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/SECURE 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 heterostropha*. 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°FI6R-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, Thorrying 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., Lozay 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., Ciffroy, 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 Fliedner, 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 Korranda 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.
- Kozlowski, 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 TOCATT. *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 TOCATT 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 TOCATT 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). ^{14}C 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., Tenailleau 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.

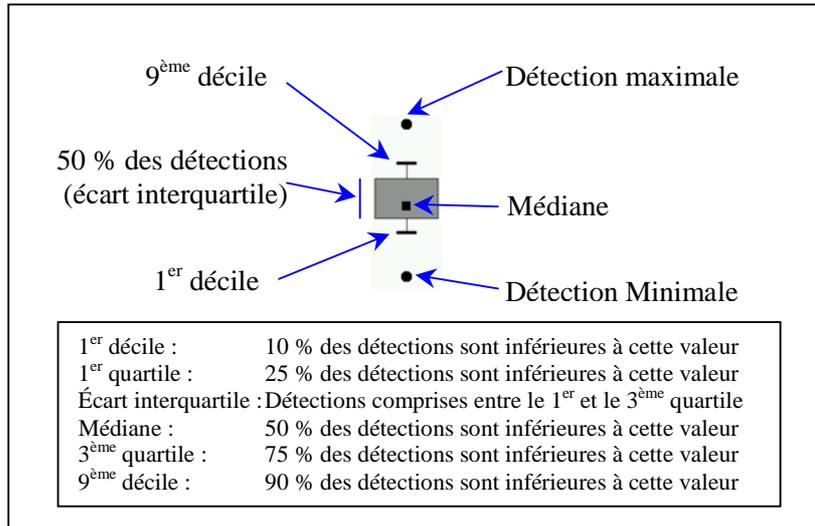
Sparrow, A.H., Schairer, L.A., Woodwell, G.M. (1965). Tolerance of *Pinus rigida* trees to a ten-year exposure to chronic gamma irradiation from cobalt-60. *Radiation Botany* 5, 7-22.

- 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 Francel*, 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 DPRE/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 Workgin Group : 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 sinskajae* to chronic and acute gamma radiation. *Radiobiologiya* 27, 1, 62-68.

ANNEXES

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 :

$$\Theta_{HTO}^{pluie} \text{ est le flux surfacique de tritium dû à la pluie } \quad (\text{Bq. m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$$

$$v_{pluie} \text{ est l'intensité de la pluie } \quad (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$$

$$[HTO]_{pluie} \text{ est l'activité volumique du tritium dans l'eau de pluie } \quad (\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3})$$

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, Tenailleau 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

$$\Theta_{HTO}^{evap} \text{ est le flux de tritium dû à l'évaporation } \quad (\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{j}^{-1})$$

$$\Theta_{eau}^{evap} \text{ est le flux d'eau dû à l'évaporation } \quad (\text{L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{j}^{-1})$$

$$[HTO]_{hyd} : \text{activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème } \quad (\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1})$$

$$\beta : \text{inverse du facteur de séparation isotopique } (= 0,91) \quad (-)$$

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, Tenailleau 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

$$Pa \text{ est la pression atmosphérique } \quad (\text{mbar})$$

$$u_{vent} \text{ est la vitesse du vent } \quad (\text{m} \cdot \text{s}^{-1})$$

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

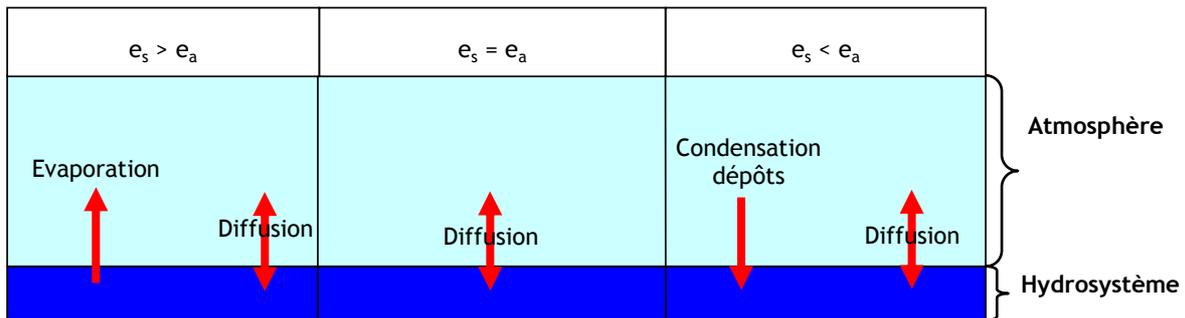
Θ_{HTO}^{diff} est le flux de tritium par diffusion (Bq.m⁻².j⁻¹)

v_e est la vitesse d'échange du tritium entre l'atmosphère et l'hydrosystème (m.j⁻¹)

$[HTO]_{hyd}$ est l'activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème (Bq.L⁻¹)

$[HTO]_{atm}$ est l'activité de tritium de la vapeur d'eau dans l'atmosphère (Bq.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 :

$$[HTO]_{sed} = \frac{[HTO]_{its} \cdot n}{\rho_w \cdot n + \rho_s \cdot (1-n)} \quad (\text{Bq} \cdot \text{kg}_{\text{frais}}^{-1})$$

où

$[HTO]_{sed}$ est l'activité massique de tritium dans le sédiment (Bq.kg_{frais}⁻¹)

$[HTO]_{its}$ est l'activité volumique de tritium dans l'eau interstitielle (Bq.m⁻³)

n est la porosité du sédiment (-)

ρ_w est la masse volumique de l'eau (kg.m⁻³)

ρ_s est la masse volumique des particules solides (kg.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 $(10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$

D_m est le coefficient de diffusion moléculaire du tritium $(\approx 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$

- 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} ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) 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 ($Bq \cdot kg^{-1}$) ;

CF_{fish} ratio $[OBT]_{organisme}/[HTO]_{wat}$ ($L \cdot kg^{-1}$; 0,6 plantes aquatiques ; 0,45 animaux aquatiques ; Kirchmann *et al.*, 1979).

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.

$$[OBT]_{fish} = (1 - H_{fish}) \cdot WEQ_{fish} \cdot PF_{fish} \cdot [HTO]_{wat} \quad \text{Équation 2}$$

où

$[OBT]_{fish}$ est l'activité d'OBT (fraction non échangeable) dans le poisson frais ($Bq \cdot kg^{-1}$ 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.

$$\frac{d[OBT]_{phpl}}{dt} = 0.4 \cdot \mu \cdot Dryf_{phpl} \cdot 0.001 \cdot [HTO]_{wat}(t) - \mu \cdot [OBT]_{phpl}(t) \quad \text{Équation 3}$$

où

$[OBT]_{\text{phpl}}(t)$ est l'activité d'OBT (fraction non échangeable) du phytoplancton à l'instant t ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais) ;

0.4 est le coefficient stœchiométrique adimensionnel

μ est le taux de croissance du phytoplancton (j^{-1}) ;

$Dryf_{\text{phpl}}$ 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 $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

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 de 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.

$$[OBTsp]_{\text{fish}}(t) = [OBTsp]_{\text{fish}}(t-1) \cdot e^{-\lambda_{\text{bio, fish}} \cdot \Delta t} + CF_{\text{fish}} [HTOsp]_{\text{wat}}(t) \cdot (1 - e^{-\lambda_{\text{bio, fish}} \cdot \Delta t}) \quad \text{Équation 4}$$

où

$[OBTsp]_{\text{fish}}(t)$ est l'activité spécifique d'OBT dans le poisson au temps t ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ H) ;

$[HTOsp]_{\text{wat}}(t)$ est l'activité spécifique de HTO dans l'eau brute au temps t ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ H) ;

$\lambda_{\text{bio, fish}}$ est la demi-vie biologique de l'OBT dans le poisson (5 à 10 j^{-1}) ;

CF_{fish} est le facteur de transfert $\text{HTO}_{\text{eau}}\text{-OBT}_{\text{poisson}}$ ($0,45 \text{ l}\cdot\text{kg}^{-1}$; Kirchmann *et al*, 1979).

L'activité d'OBT dans les poissons est alors obtenue par l'équation :

$$[OBT]_{\text{fish}}(t) = (1 - H_{\text{fish}}) \cdot \omega_{\text{fish}} \cdot [OBTsp]_{\text{fish}}(t) \quad \text{Équation 5}$$

où

ω_{fish} est la concentration en hydrogène dans la matière organique du poisson (55 à 85 g H 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 :

$$\frac{d[OBT]_{\text{organism, x}}}{dt} = a_x \cdot [OBT]_{\text{food, x}}(t) + b_x \cdot [HTO]_{\text{wat}}(t) - \lambda_{\text{bio, x}} [OBT]_{\text{organism, x}} \quad \text{Équation 6}$$

où

$[OBT]_{\text{organism, x}}(t)$ est l'activité d'OBT (fraction non échangeable) dans l'organisme de l'animal x à l'instant t ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais) ;

a_x est le coefficient de transfert de l'OBT entre l'animal x et sa nourriture (j^{-1}) ;

$$a_x = (1 - SAR_x) \cdot \lambda_{\text{bio, x}} ;$$

SAR_x est le ratio entre activité spécifique en OBT de l'animal x et activité spécifique en HTO de l'eau

$\lambda_{\text{bio, x}}$ 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.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.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
Poissons piscivores		10 - 25 jours

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 :

$$\lambda_{bio,x} = c \cdot E \cdot C_a \cdot W^{C_b} \cdot F_c(T) \quad \text{Équation 7}$$

où

c est la fraction du taux maximum d'alimentation journalier (g.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

T 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.