

TRITIUM



- ASPECTS SANITAIRES -

I. Caractéristiques

I.1 Chimiques

L'hydrogène a trois isotopes : l'hydrogène léger qui est le plus abondant, le deutérium et le tritium. Ce dernier est l'isotope radioactif, dont le noyau est constitué d'un proton et de deux neutrons, et représenté par ${}^3\text{H}$ ou T. Découvert en 1934 par Rutherford et identifié par Alvarez en 1937, ses propriétés chimiques sont identiques à celles de l'hydrogène. Le tritium existe sous plusieurs formes chimiques :

-Eau tritiée (HTO)

Légèrement plus lourde que l'eau légère H_2O , c'est la forme la plus abondante du tritium dans le milieu naturel et les espèces vivantes. La différence de masse entre les composés H et T se manifeste dans les processus naturels de changement de phase tels que l'évaporation, la condensation ou la solidification, et entraîne un faible enrichissement du tritium par rapport à l'hydrogène léger dans la phase condensée.

-Tritium gazeux (HT)

Cette forme est rencontrée lors des recherches sur la production d'énergie par fusion nucléaire.

-Tritium lié à la matière organique

Une partie du tritium minéral entre dans les molécules organiques par échange avec un hydrogène labile ou par des réactions métaboliques. Ce phénomène se produit aussi bien pour les végétaux, par la photosynthèse, que chez l'homme et l'animal.

-Méthane tritié (CH_3T)

I.2 Nucléaires

		${}^3\text{H}$
Période radioactive		12,3 ans
Activité massique	- Tritium pur T - Eau tritiée HTO <small>eau composée de molécules HTO, sans molécule H_2O</small> - Tritium gaz HT <small>gaz composé uniquement de molécule HT</small>	$3,6 \cdot 10^{14} \text{ Bq.g}^{-1}$ $5,4 \cdot 10^{13} \text{ Bq.g}^{-1}$ $3,7 \cdot 10^{14} \text{ Bq.g}^{-1}$
Emission(s) principale(s) (rendement d'émission pour 100 désintégrations)		Désintégration β^- $E_{\text{max}} = 19 \text{ keV (100\%)}$

[ICRP, 1983 - Browne et Firestone, 1986]

II. Origines

La quantité de tritium présente dans le monde a fortement augmenté avec le développement de l'utilisation de l'énergie nucléaire, et surtout en raison des essais d'armes thermonucléaires dans l'atmosphère. Le retour à la situation antérieure aux essais est en cours. La décroissance radioactive a fait disparaître près de 90 % des masses de tritium créées artificiellement dans l'environnement entre 1945 et la fin des années soixante.

II.1 Naturelle

Bien que sa période radioactive soit courte, le tritium est présent en permanence 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 normal de l'eau (pluie, cours d'eau, océan, évaporation...). Il a été estimé [UNSCEAR, 2000] que l'inventaire global du tritium naturel est d'environ $1,3 \cdot 10^{18}$ Bq, ce qui correspond à une production annuelle de $7,2 \cdot 10^{16}$ Bq. La production tellurique est difficile à estimer avec exactitude, mais il semble qu'elle soit très petite devant la production atmosphérique.

II.2 Artificielle

- Explosions nucléaires atmosphériques

Les essais militaires jusqu'en 1970 ont disséminé une quantité de tritium estimée à $2,4 \cdot 10^{20}$ Bq. L'inventaire du tritium dans les océans atteignait $6,3 \cdot 10^{19}$ Bq en 1972. Actuellement, son accumulation dans l'environnement (principalement dans les océans) est estimée à environ $4,3 \cdot 10^{19}$ Bq [UNSCEAR, 1993].

- Fabrication des armes thermonucléaires

Le tritium est nécessaire à la fabrication des armes thermonucléaires. Les rejets gazeux de tritium du centre CEA de Valduc en 1999 se sont élevés à $2,67 \cdot 10^{14}$ Bq avec une répartition HTO/HT de l'ordre de 80/20.

- Emissions par les réacteurs nucléaires

Du tritium est formé dans les réacteurs nucléaires par les fissions ternaires de certains isotopes de l'uranium et du plutonium et par des réactions neutroniques sur des éléments légers du circuit primaire. Dans les réacteurs à eau légère (les plus répandus), le tritium de fission reste en grande partie dans le combustible lui-même (environ 87 %), ainsi que dans les gaines de zircaloy où il se trouve sous forme d'hydrure de zirconium (environ 13 %). Le dégagement du tritium dans l'eau du circuit primaire est minime et se produit seulement en cas de défauts dans les gaines de zircaloy. Le tritium formé par activation neutronique constitue la majeure partie de ce qui est rejeté par le réacteur. De 1995 à 1997, les réacteurs à eau légère ont rejeté chacun en moyenne $2,4 \cdot 10^{12}$ Bq de tritium gazeux et $1,9 \cdot 10^{13}$ Bq d'eau tritiée par an [UNSCEAR, 2000].

- Rejets par les usines de retraitement de combustibles irradiés

Le tritium de fission est libéré en grande partie lorsque le combustible usé est mis en solution lors du retraitement. De 1985 à 1989, les usines de La Hague ont rejeté $2,6 \cdot 10^{14}$ Bq par an de tritium gazeux dans l'atmosphère et principalement, $4,37 \cdot 10^{15}$ Bq d'eau tritiée par an dans le milieu marin [UNSCEAR, 1993].

Pour l'usine de la Hague en 1999, les rejets gazeux de tritium se sont élevés à $8 \cdot 10^{13}$ Bq et les rejets liquides à $1,3 \cdot 10^{16}$ Bq.

Pour l'usine de Sellafield (GB) en 1997, les rejets gazeux de tritium se sont élevés à $1,7 \cdot 10^{14}$ Bq et les rejets liquides à $2,6 \cdot 10^{15}$ Bq [BNFL, 1997].

III. Transfert à l'environnement et métrologie

III.1 Données environnementales

Comme isotope de l'hydrogène, le tritium participe au cycle de cet élément dans l'environnement naturel. Il peut être présent dans toutes les molécules hydrogénées, être associé aussi bien à l'eau tissulaire qu'à la matière organique des végétaux et des aliments qui en dérivent. C'est un radionucléide qui, sous forme d'eau tritiée, est très mobile et de ce fait rapidement intégré dans de nombreux cycles de la géosphère et de la biosphère. En situation

d'équilibre vrai, il ne semble pas s'accumuler préférentiellement dans tel ou tel composant environnemental ou biologique [Belot et al., 1996].

III.2. Métrologie environnementale

Foulquier et al. (1998, p. 80-81) proposent des méthodes de mesure dans l'environnement.

Dans l'eau, le comptage est directement réalisé sur des échantillons filtrés. Le résultat est exprimé en Bq.l^{-1} .

Les échantillons de lait sont séparés en deux parties. La première (environ 700 ml) est distillée à 100 °C. La mesure du tritium libre est effectuée sur le distillat et le résultat obtenu s'exprime directement en Bq.l^{-1} . La seconde partie de l'échantillon (300 ml) est desséchée à 105 °C. La "pâte" récupérée subit une préparation destinée à la mesure du tritium "non labile", lié à la matière organique. D'un point de vue quantitatif, le tritium libre est prépondérant par rapport à celui qui est lié à la matière organique.

Les échantillons de sols, de boues de décantation, de sédiments, de végétaux aquatiques et terrestres, de vin et de poissons subissent également une préparation qui consiste en :

- un séchage à 105 °C, pendant une semaine environ, afin d'éliminer le tritium libre des échantillons ;
- un séchage à 105 °C, pendant 10 jours sous une atmosphère exempte de tritium, afin d'éliminer le tritium "labile" lié à la matière organique ;
- une combustion à 900 °C, sous flux d'oxygène, afin de recueillir le tritium "non labile" lié à la matière organique. Le liquide recueilli est appelé "eau de combustion".

Les échantillons de 10 ml d'eau brute, d'eau du lait ou d'eau de combustion, sont mélangés à 10 ml d'Instagel, liquide scintillant. Ils sont ensuite analysés par scintillation liquide à l'aide d'un compteur adapté aux comptages de très faibles activités selon la méthode décrite par Belot et al. (1996). La mesure peut être effectuée pendant 300 minutes pour obtenir une sensibilité de 10 Bq.l^{-1} , 1 000 minutes pour obtenir une sensibilité de 3 Bq.l^{-1} ou 2 000 minutes pour obtenir une sensibilité de 1 Bq.l^{-1} d'eau.

IV. Utilisations industrielles et médicales

Le tritium est utilisé :

- pour la fabrication de peintures luminescentes en remplacement du radium ;
- pour le marquage de molécules pour les études de métabolisme de certaines substances, en biologie ou en pharmacie ;
- comme traceur de l'eau de la géosphère et de la biosphère ;
- comme dans les tests d'étanchéité des cavités de stockage souterrain ;
- dans les générateurs de neutrons 14MeV où des cibles de ^3H sont bombardées par des deutons (H_2).

V. Atteinte de l'homme

V.1 Exposition externe

Les coefficients de dose efficace ci-après sont issus du rapport n°12 du Federal Guidance (1993) et sont valables quel que soit l'âge de l'individu exposé.

	Dose efficace
Panache	$3,31 \cdot 10^{-19}$ (Sv /s) / (Bq/m ³)
Dépôt	-
Immersion dans l'eau	-

V.2 Contamination externe de la peau

Une partie du ³H peut être absorbée à travers la peau ; cette voie de contamination accompagne souvent une inhalation. Pour une concentration dans l'air ambiant de 1 Bq.m⁻³, la vitesse de pénétration dans l'organisme à travers la peau est de 10⁻² Bq.mn⁻¹.

V.3 Exposition interne

- Biocinétique

Le passage du ³H dans le sang et son transfert à l'organisme dépendent de la forme de dépôt.

-Ingestion

L'eau tritiée (HTO) et les molécules organiques marquées au tritium peuvent être ingérées lors de l'absorption d'aliments et d'eau contaminés par le tritium, ou accidentellement lors de manipulations expérimentales. Leur absorption est complète ; la totalité de la quantité ingérée franchit la barrière gastro-intestinale et passe dans le sang.

-Inhalation

Le tritium gaz (HT), l'eau tritiée (HTO) et, dans une certaine mesure, les composés organiques tritiés peuvent être inhalés sous forme de gaz. Lorsque du tritium gazeux est inhalé, une très faible partie (environ un millième) est absorbée puis oxydée en eau tritiée.

-Rétention-Elimination

Le modèle biocinétique pour l'eau tritiée et les composés organiques tritiés est décrit pour le travailleur dans la Publication 56 de la CIPR (1990). Il suppose que 97% de l'eau tritiée est en équilibre avec l'eau du corps et est retenu avec une demi-vie de 10 jours, le restant étant incorporé dans les molécules organiques et retenu avec une demi-vie de 40 jours. Pour les composés organiques du tritium, 50% de l'activité est retenu avec la période biologique de l'eau libre (10 jours) et 50% avec la période biologique du carbone organique (40 jours).

[Pour plus de renseignements : voir logiciel " Calliope ", 1999]

- Mesure

Dans la plupart des programmes de surveillance du tritium, les échantillons urinaires ne sont pas recueillis sur 24 heures comme pour les autres éléments. Si on suppose que l'activité urinaire de l'eau tritiée est en équilibre avec l'activité de l'eau du corps, les résultats de l'analyse d'eau tritiée sur un simple échantillon urinaire sont ceux de l'activité de l'eau corporelle au moment du prélèvement. Pour cette raison, les résultats d'activité urinaire en eau tritiée sont exprimés en Bq.l⁻¹ plutôt qu'en Bq par 24 heures.

Tritium	Méthode de mesure		Limite de détection
	Comptage par scintillation liquide	Urine	100 Bq.l ⁻¹

[ICRP, 1998]

- Coefficients de dose

Pour le public, les données ci-après sont issues de la Directive Européenne 96/29/EURATOM.

Elles considèrent un temps d'intégration de **50 ans** pour l'adulte et jusqu'à l'âge de **70 ans** pour l'enfant et des débits respiratoires moyens respectifs de **0,9 m³.h⁻¹** et de **0,2 m³.h⁻¹**.

		Dose efficace (Sv /Bq)	
		Adulte	Enfant (1-2 ans)
Inhalation	-Eau tritiée HTO	$1,8 \cdot 10^{-11}$	$4,8 \cdot 10^{-11}$
	-Tritium organique (type M) $AMAD = 1\mu m$	$4,1 \cdot 10^{-11}$	$1,1 \cdot 10^{-10}$
	-Tritium gazeux HT	$1,8 \cdot 10^{-15}$	$4,8 \cdot 10^{-15}$
	-Méthane tritié CH_3T	$1,8 \cdot 10^{-13}$	$4,8 \cdot 10^{-13}$
Ingestion	-Eau tritiée HTO	$1,8 \cdot 10^{-11}$	$4,8 \cdot 10^{-11}$
	-Tritium organique	$4,2 \cdot 10^{-11}$	$1,2 \cdot 10^{-10}$

Pour les travailleurs, les données ci-après sont issues de la Directive Européenne 96/29/EURATOM.

Elles considèrent un temps d'intégration de **50 ans** et un débit respiratoire moyen égal à $1,2 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

		Dose efficace (Sv /Bq)
		Travailleur
Inhalation	-Eau tritiée HTO	$1,8 \cdot 10^{-11}$
	-Tritium organique (type M) $AMAD = 1\mu m$	$4,1 \cdot 10^{-11}$
	-Tritium gazeux HT	$1,8 \cdot 10^{-15}$
	-Méthane tritié CH_3T	$1,8 \cdot 10^{-13}$
Ingestion	-Eau tritiée HTO	$1,8 \cdot 10^{-11}$
	-Tritium organique	$4,2 \cdot 10^{-11}$

V.4 Dangersité

Le risque d'exposition au tritium est lié à la contamination interne.

-Groupe de radiotoxicité : indicateur de radiotoxicité au sens du décret 88-521 du 18/04/88.

4 (faible)

-Valeur d'exemption : : activité au-dessous de laquelle une pratique est exemptée de déclaration d'après la Directive Européenne n°96/29/EURATOM du 13 mai 1996.

10^9 Bq

VI. Protection des travailleurs

VI.1 Individuelle

Du fait de l'absorption de la vapeur d'eau tritiée par la peau (respiration transcutanée), le seul port d'un masque même isolant (adduction d'air respiratoire) ne suffit pas à assurer une protection valable. Il convient donc de protéger le corps entier en utilisant un vêtement "imperméable au tritium". Néanmoins, il convient de prêter attention au fait qu'un travail en scaphandre est beaucoup plus long et qu'il nécessite de plus un stationnement prolongé dans le sas de sortie pour assurer une décroissance suffisante de la contamination atmosphérique et de la contamination surfacique extérieure grâce à un balayage d'air important.

VI.2 Collective

Dans les locaux où le tritium est manipulé, le tritium est confiné de façon statique par étanchéité des appareils et dynamique grâce à la ventilation.

Le taux de renouvellement horaire dans les locaux doit être important (20 à 40 renouvellements par heure), car le tritium gazeux diffuse extrêmement rapidement dans l'atmosphère.

La vitesse de l'air dans le procédé (caisson par exemple) ou dans les hottes où le tritium est manipulé doit être de $1,5 \text{ m.s}^{-1}$ pour éviter toute rétrodiffusion.

VII. Accidents

VII.1 Réponse médicale

En cas de contamination de la peau ; décontaminer par simple lavage.

En cas de contamination interne ; procéder au recueil immédiat des urines (pendant 24 heures et les jours suivants si nécessaire, selon le niveau présumé de la contamination).

Le but du traitement est de stimuler l'excrétion urinaire par administration au maximum de 6 à 8 litres d'eau par jour sous contrôle médical, en surveillant le sodium et le potassium pour éviter une intoxication par l'eau. La dilution isotopique obtenue par absorption importante de boisson paraît suffisante puisqu'elle fait passer la période biologique de 10-12 jours à 3-4 jours. Le contrôle s'effectue de façon journalière sur des échantillons d'urine [NCRP Report n° 65, 1980].

VII.2 Réponse sanitaire

Pour les eaux de boisson, les recommandations de l'OMS (1993) préconisent une limite de 7800 Bq.l^{-1} . La Directive Européenne 98/83/CE du 3 novembre 1998 relative à la qualité des eaux destinées à la consommation humaine, donne comme indicateur de la contamination des eaux « la concentration de tritium » : la valeur proposée comme seuil d'alerte est de 100 Bq.l^{-1} . Si une concentration supérieure est détectée, les autorités sanitaires examinent s'il existe un risque pour la santé des personnes ; si oui, elles demandent que des mesures soient prises en matière de restriction ou d'interdiction de consommation.

VIII. Textes réglementaires généraux

-Directive Européenne n°96/29/EURATOM adoptée le 13 mai 1996, fixant les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultant des rayonnements ionisants (J.O.C.E. n°159 du 29 juin 1996). Les limites annuelles de dose sont les suivantes :

	Public	Travailleur
Dose efficace	1 mSv	100 mSv/ 5 ans consécutifs et au plus 50 mSv/an
Dose équivalente à la peau	50 mSv	500 mSv

-Brochure du Journal Officiel (J.O.) n°1420 : protection contre les rayonnements ionisants. Ce document rassemble tous les textes législatifs et réglementaires de radioprotection et notamment :

- Le décret n° 88-521 du 18 avril 1988 modifiant le décret du 20 juin 1966 relatif aux principes généraux de radioprotection ;
- Le décret n° 86-1103 du 2 octobre 1986 modifié relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants et ses textes d'application.

IX. Bibliographie

- BELOT Y., ROY M., METIVIER H., *Le TRITIUM de l'environnement à l'Homme*, Editions de Physique, Paris, 1996.
- BNFL, Annual Report on Radioactive discharges and monitoring of the environment, 1997.
- BROWNE E., FIRESTONE R., Table of radioactive isotopes, Shirley V Editor., Wiley-Interscience Publication, 1986.
- Calliope, CD-Rom, Collection IPSN, 1999.
- Federal Guidance Report n°12, *External exposure to radionuclides in air, water and soil*. Oak Ridge National Laboratory, 1993.
- FOULQUIER L., BRETHERAU F., *Les Installations Nucléaires et l'Environnement*, Editions de Physique, Paris, 1998.
- GALLE P., *Toxiques nucléaires*, Paris, Masson (2^e édition), 1997.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection) Publication 38, *Radionuclide transformations, Energy and intensity of emissions*, Oxford Pergamon Press, 1983.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection) Publication 56, *Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides*, Oxford Pergamon Press, 1990.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection) Publication 78, *Individual monitoring for internal exposure of workers*, Oxford Pergamon Press, 1998.
- NCRP, *Tritium in the environment*, National Council on Radiation Protection and measurements, Report n° 62, Washington, 1979.
- NCRP, *Management of persons accidentally contaminated with radionuclides*, Report n°65, 1980, revu en 1993.
- OECD/NEA, *Radiological significance and management of TRITIUM, CARBON 14, KRYPTON 85, IODINE 129 arising from the nuclear fuel cycle*, Paris, 1980.
- OMS, *Guidelines for drinking water quality*, WHO, Genève (2^e édition), vol. 1, 1993.
- OPRI/INRS, *Tritium : Fiche technique de radioprotection pour l'utilisation de radionucléides en sources non scellées*, 1996.
- UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), *Sources and effects of ionizing radiation*, New York, United Nations, 1993.
- UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), Vol I, *Sources and effects of ionizing radiation*, New York, United Nations, 2000.

Rédacteurs de la Fiche : P. Bérard, E. Gaillard-Lecanu, B. Le Guen, M.L. Perrin, V. Chambrette, J. Brenot (DPHD).

Vérificateur : A. Desprès (DPHD)