

Tritium et environnement

${}^3_1\text{H}$



Olivier Seignette/Mikael Lafontain/IRSN

Sommaire

Préambule	3
Caractéristiques	3
Origines	4
Concentrations dans l'environnement	5
Métrologie, techniques d'analyse, limites de détection	7
Mobilité et biodisponibilité en milieu terrestre	9
Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes d'eau douce	11
Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes marins	13
Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes semi-naturels	14
Dosimétrie environnementale	14
Toxicité environnementale	14
En résumé ...	15
Modèles radioécologiques usuels (à l'équilibre) : milieu terrestre	16
Modèles radioécologiques usuels : eaux douces	20
Paramètres radiotoxiques	24
Bibliographie succincte	26

Cette fiche résume le comportement du radionucléide dans les principaux compartiments des écosystèmes terrestres et aquatiques. Cet isotope existant aussi à l'état naturel, les voies et processus de transfert peuvent différer selon l'origine du tritium, notamment du fait de la forme chimique et du milieu d'émission des rejets.

Les informations, volontairement simplifiées, sont destinées à refléter l'état des connaissances sur le sujet à la date de mise à jour et à proposer des valeurs pour les principaux paramètres radioécologiques usuels permettant une estimation des transferts dans l'environnement et plus particulièrement au sein de la chaîne alimentaire.

Rédaction : P. Calmon, J. Garnier-Laplace

Vérification : C. Colle

Date de rédaction : 29/06/01

Révision :

Écosystème terrestre : S. Le Dizes-Maurel

Écosystème aquatique continental : C. Adam-Guillermin

Écosystème marin : P. Bailly du Bois

Métrologie : C. Cossonnet, R. Gurriaran, J. Loyen, J.L. Picolo

Concentrations dans l'environnement : P. Renaud

Vérification : K. Beaugelin-Seiller, D. Boust, F. Paquet

Date de révision : 18/12/2010

Illustrations : Laurent Stefano

Ce document est la propriété intellectuelle de l'IRSN et ne peut être reproduit sans son autorisation

PRÉAMBULE

Cette fiche s'appuie sur les éléments d'information présentés de façon détaillée dans la synthèse des connaissances sur le comportement du tritium dans l'environnement réalisée en 2009 par l'IRSN (IRSN, 2009). Le lecteur est invité à s'y référer pour tout complément qui lui serait nécessaire. Un second document (IRSN, 2010) présente le point de vue de l'institut sur les questions clés restant à résoudre et les pistes de recherche et développement associées.

Caractéristiques

Chimiques

Le tritium est l'isotope radioactif de l'hydrogène figuré par ^3H ou T. Ses propriétés chimiques sont identiques à celles de l'hydrogène. Qu'il soit d'origine naturelle ou anthropique, le tritium est extrêmement mobile dans l'environnement et dans tous les systèmes biologiques.

Le tritium existe sous trois formes chimiques :

Eau tritiée (HTO) : appelée aussi « eau lourde » (surcroît de masse de 11 % par rapport à H_2O), c'est la forme la plus abondante du tritium dans le milieu naturel et les organismes vivants. Lorsque le tritium n'est pas introduit dans l'environnement sous cette forme, HTO résulte le plus souvent de l'oxydation de HT sous l'action de la lumière ou des bactéries. La rapidité des échanges avec l'hydrogène de l'eau favorise l'homogénéisation des concentrations en HTO au sein des organismes vivants.

Dans les molécules où le tritium remplace l'hydrogène, la différence de masse des atomes se manifeste dans les processus naturels de changement d'état tels que l'évaporation, la condensation ou la solidification. Cela entraîne un faible enrichissement en tritium de la phase condensée par rapport à l'hydrogène léger.

Tritium gazeux (HT) : cette forme chimique, qui ne concerne qu'une fraction des rejets atmosphériques de tritium, pourrait prendre de l'importance avec le développement de la production d'énergie par fusion nucléaire. Sous l'effet de processus d'oxydation, l'hydrogène tritié se transforme en eau tritiée et rejoint le cycle de l'eau.

Tritium organique (OBT⁽¹⁾ – Organically Bound Tritium) : cette forme, qui correspond au tritium lié à la matière organique, résulte de l'incorporation du tritium dans divers composés organiques au cours des processus de synthèse de la matière vivante. La distribution de ces composés organiques s'effectue en fonction de leurs propriétés chimiques propres, ce qui pourrait expliquer les éventuelles hétérogénéités de répartition du tritium entre les tissus. La stabilité du tritium au sein de ces composés dépend de la nature de la liaison du tritium avec la molécule organique et de l'affinité de la molécule organique pour les différents tissus biologiques. On distingue :

- **le tritium échangeable** : il existe une fraction échangeable lorsque des atomes d'hydrogène liés à l'oxygène, au soufre ou à l'azote sont remplacés par du tritium et sont facilement accessibles à de nouveaux échanges ; cette fraction de tritium fixée de façon labile sur des molécules biologiques s'équilibre avec la concentration en eau tritiée dans le milieu intracellulaire ;

- **le tritium non échangeable** : le tritium est lié à un carbone par une liaison covalente. Cette liaison est permanente tant que la molécule biologique n'est pas elle-même transformée/détruite par réaction enzymatique. La durée de l'incorporation de tritium dépend donc du turn-over de la molécule biologique : rapide pour des molécules qui participent au cycle énergétique, et plus lente pour des molécules de structure ou des macromolécules comme l'ADN ou des molécules de réserve énergétique.

Ces mécanismes d'échange sont communs à tous les organismes vivants, végétaux ou animaux. La répartition entre eau tritiée, tritium échangeable et tritium non échangeable diffère en fonction des apports respectifs en HTO et OBT, de la nature des liaisons organiques générant l'OBT et du métabolisme propre à chaque espèce.

Le tritium est plus lourd que l'hydrogène et, par effet isotopique, les réactions enzymatiques impliquant l'isotope radioactif sont plus lentes que celles mettant en oeuvre l'isotope stable (voir synthèse dans Belot *et al.*, 1996).

¹ Noté aussi TOL pour Tritium Organiquement Lié.

Nucléaires

L'hydrogène possède six isotopes de masse 1 à 6, dont les deux premiers sont stables. Le tritium (^3H) est le seul isotope radioactif dont la période de décroissance est supérieure à l'année.

	^3H
Période radioactive	12,32 ans
Activité massique	$3,56 \times 10^{14} \text{ Bq.g}^{-1}$
Précurseur	^4H , ^5H , ^6H
Descendant	^3He
Émission(s) principale(s) par désintégration (probabilité d'émission %)	β^- 18,6 keV (100 %)
Énergie moyenne	β^- 5,7 keV

(Nucleonica ; CE, 2009)

Origines

La quantité de tritium présente dans la biosphère a fortement augmenté lors des essais d'armes thermonucléaires dans l'atmosphère et avec le développement de l'utilisation de l'énergie nucléaire. À l'échelle globale, un retour à des concentrations proches de celles précédant les essais est en cours. La décroissance radioactive a fait disparaître près de 90 % du tritium introduit dans l'environnement entre 1945 et la fin des années soixante.

Naturelles

Le tritium existe en très faible abondance dans l'environnement en comparaison de l'hydrogène ou du deutérium. Sa production naturelle est en majorité issue des réactions nucléaires qui se produisent dans la haute atmosphère, entre les atomes atmosphériques d'azote et d'oxygène et le rayonnement cosmique de haute énergie.

Environ 99 % du tritium produit dans la haute atmosphère est oxydé en eau tritiée (HTO) et se mélange aux eaux de surface. La production naturelle annuelle atmosphérique est comprise entre 0,15 et 0,20 kg, soit $5,0$ à $7,0 \times 10^{16} \text{ Bq}$, en supposant que la production équilibre la décroissance physique (voir synthèse dans Lebaron-Jacobs *et al.*, 2009).

Une petite fraction du tritium naturel est générée dans la croûte terrestre lors de réactions de capture des neutrons sur les traces de lithium-6 contenu dans les roches. Les neutrons intervenant dans cette réaction sont produits lors de la fission spontanée d'uranium-238 ou des réactions (α , n) engendrées par le rayonnement alpha de l'uranium et du thorium. Cette production dans la croûte terrestre semble être infime par comparaison à la production atmosphérique.

Artificielles

Essais nucléaires

De nombreux radionucléides, dont le tritium, ont été rejetés dans l'atmosphère lors des essais atmosphériques d'engins nucléaires, qui ont principalement eu lieu entre 1945 et 1963. Ces essais ont libéré environ 650 kg ($2,3 \times 10^{20} \text{ Bq}$) de tritium ($520 \text{ kg} - 1,84 \times 10^{20} \text{ Bq}$ dans l'hémisphère nord et $130 \text{ kg} - 4,6 \times 10^{19} \text{ Bq}$ dans l'hémisphère sud). Compte tenu de la décroissance radioactive du tritium, il en restait en 2007 environ 40 kg - $1,4 \times 10^{19} \text{ Bq}$ répartis entre l'atmosphère (1 %), les océans (90 %) et les eaux continentales (10 %). Cette valeur est à comparer à celle de l'inventaire permanent de tritium naturel qui est de 3,5 kg ($1,2 \times 10^{18} \text{ Bq}$; UNSCEAR, 2000 ; Guétat *et al.*, 2008).

Installations nucléaires

Les installations nucléaires qui rejettent du tritium dans l'environnement sont les centrales nucléaires à eau sous pression, les usines de retraitement et de recyclage de combustibles irradiés et les réacteurs dédiés à la production de tritium.

Dans les réactions des centrales nucléaires à eau lourde, la production de tritium par activation neutronique

du deutérium de l'eau lourde (environ 1,9 g – $6,8 \times 10^{14}$ Bq par an pour un réacteur de 900 MWe) est largement supérieure à celle des réacteurs à eau légère où le tritium de fission ternaire de certains isotopes de l'uranium et du plutonium reste en grande partie dans le combustible lui-même. Dans un réacteur à eau pressurisée, le tritium rejeté est produit par capture des neutrons par le bore ^{10}B : environ 0,03 g ($1,1 \times 10^{13}$ Bq par an) pour un réacteur de 900 MWe et environ 0,09 g ($3,2 \times 10^{13}$ Bq) pour un réacteur de 1 300 MWe.

Le tritium des combustibles irradiés est principalement récupéré lors des opérations de retraitement, lorsque le combustible est cisailé. Il se retrouve sous la forme d'eau tritiée dans les effluents liquides rejetés pour l'essentiel en mer. L'usine de la Hague, par exemple rejette environ 30 g (10^{16} Bq) de tritium par an pour 1 600 tonnes de matière nucléaire et celle de Sellafield (UK) environ 8 g ($2,8 \times 10^{15}$ Bq) par an (voir synthèse dans Lebaron-Jacobs *et al.*, 2009).

Autres sources

Du tritium est présent dans les déchets nucléaires immergés en mer entre 1949 et 1982, principalement dans l'Atlantique du nord-est. L'inventaire est de l'ordre de 112 g (4×10^{16} Bq) de tritium environ.

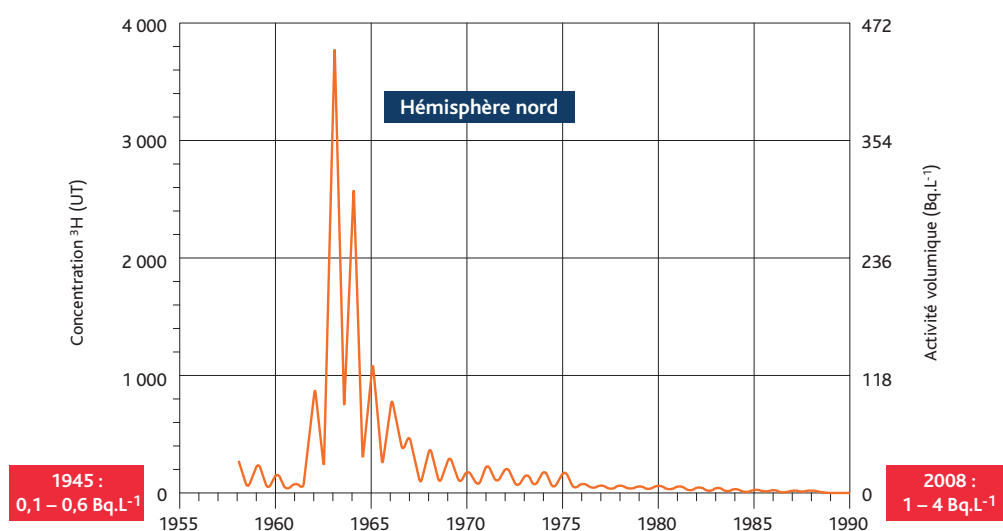
Certaines industries utilisent le tritium : applications militaires, médicales ou de recherche, et pour la production d'objets luminescents (horlogerie). La quantité de tritium rejetée reste faible à l'échelle mondiale mais peut induire des concentrations importantes localement. La forme chimique du tritium peut également induire localement des marquages significatifs au sein des espèces vivantes ou des sédiments (cf. chapitres suivants).

Concentrations dans l'environnement

Hors influence des installations nucléaires

La concentration en tritium exprimée en Bq.L^{-1} est homogène dans toutes les composantes des deux grands ensembles que sont le milieu continental (atmosphère, eaux de surface, faune et flore terrestres et dulçaquicoles) d'une part et le milieu marin d'autre part.

En milieu continental non influencé, les concentrations en tritium (« bruit de fond ») sont actuellement de 1 à 4 Bq.L^{-1} d'eau. Leur écart au bruit de fond cosmogénique (0,1 à 0,6 Bq.L^{-1}) s'explique par la fin de l'influence des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires qui, pour le tritium, ont généré les activités volumiques maximales en 1963 avec près de 470 Bq.L^{-1} dans l'eau de pluie (figure 1).



Courbe lissée représentant la teneur moyenne en ^3H des précipitations au-dessus de la surface continentale de l'hémisphère nord. (Source : AIEA Isotope hydrology, 2006)

Figure 1 : évolution de la teneur en tritium de l'eau de pluie dans l'hémisphère nord entre 1945 et 2008 (les valeurs en rouge correspondent en 1945 au bruit de fond naturel antérieur aux essais nucléaires et en 2008 au niveau actuel).

En milieu marin, le tritium émis lors des essais nucléaires s'est complètement « dilué » dans le tritium cosmogénique et les concentrations y sont restées en surface de l'ordre de 0,1 à 0,2 Bq.L^{-1} . Ces concentrations sont moins importantes en profondeur.

Dans l'atmosphère, la concentration de 1 à 2 Bq.L⁻¹ mesurée dans la vapeur d'eau correspond à une activité volumique de l'ordre de 0,01 à 0,02 Bq.m⁻³ d'air.

Dans les matrices biologiques, la concentration totale de tritium est de 1,5 à 2,5 Bq.kg⁻¹ frais en milieu continental, avec une contribution variable des formes libre et liée (figure 2). En milieu marin, elle est inférieure à 2 Bq.kg⁻¹ frais en général. Elle est par exemple de 0,5 Bq.kg⁻¹ frais dans les moules de Méditerranée.

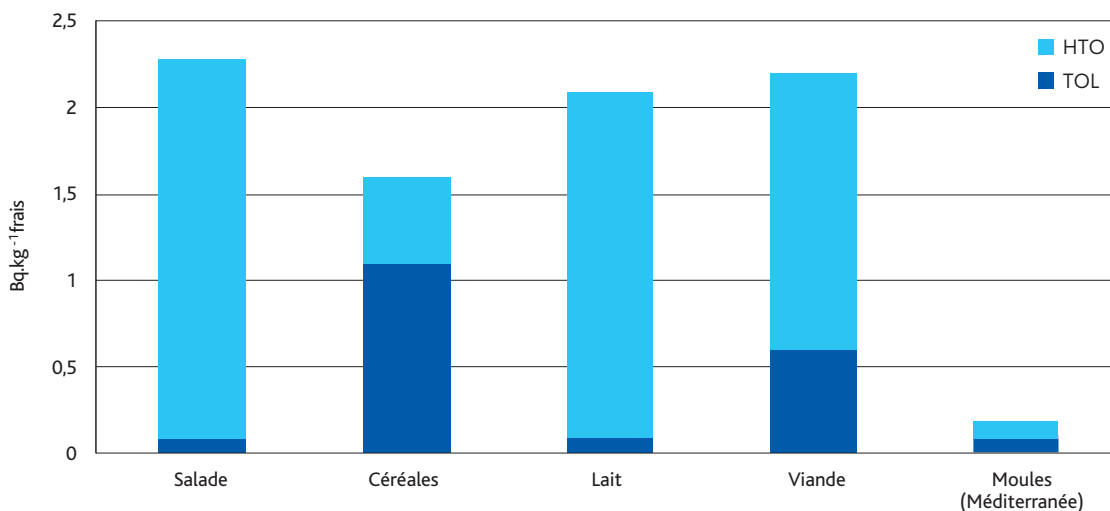


Figure 2 : ordres de grandeur des concentrations actuelles en tritium de quelques denrées alimentaires sur le territoire métropolitain, hors influence des installations nucléaires.

Influence des installations nucléaires

L'influence d'une installation nucléaire sur les niveaux de tritium dans l'environnement est toujours très locale. Ainsi, les activités ajoutées dans l'environnement terrestre du fait des rejets atmosphériques des installations inférieurs à 5×10^{11} Bq.an⁻¹ (les moins puissants des CNPE par exemple) ne sont habituellement pas décelables car masquées par le bruit de fond actuel. L'influence des rejets de tritium de ces installations n'est potentiellement visible que dans le milieu aquatique.

Dans l'environnement des installations rejetant plus de $1 \text{ à } 2 \times 10^{13}$ Bq.an⁻¹ de tritium gazeux (CEA à Valduc, site de Marcoule, usine AREVA-NC de La Hague, centres CEA de Bruyères-le-Châtel et de Saclay essentiellement), des activités plus élevées, de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de Bq.L⁻¹ (Valduc ou Marcoule), sont observées sur des zones allant de quelques km² à plus d'une centaine de km² (cas de Marcoule) en milieu terrestre. Sur ces sites, les eaux de surface et souterraines sont également en équilibre avec ces valeurs.

Pour des rejets atmosphériques annuels compris entre 5×10^{11} et 10^{13} Bq (CNPE les plus puissants par exemple), des activités supérieures au bruit de fond (5 à 10 Bq.L⁻¹) sont occasionnellement mesurées dans l'environnement sans qu'il soit possible de conclure statistiquement à une contamination. Cette situation pourrait changer à terme avec, d'une part l'augmentation des rejets de tritium due à un nouveau mode de gestion du combustible dans les CNPE et d'autre part la baisse de la contribution des essais nucléaires atmosphériques anciens. L'influence des rejets atmosphériques de tritium des CNPE sera plus facilement décelable quand le bruit de fond sera plus bas.

Dans les fleuves, et notamment dans la partie aval du Rhône, l'activité du tritium varie entre 1 et 10 Bq.L⁻¹, voire 20 ou 50 Bq.L⁻¹ à l'aval immédiat des installations (Antonelli, 2007 ; Antonelli, 2008). En Manche, l'influence des rejets tritiés des centrales électronucléaires est masquée par l'influence de ceux de l'usine d'AREVA La Hague dont les rejets conduisent à des activités volumiques comprises entre 3 et 10 Bq.L⁻¹ à la pointe du Cotentin, et de l'ordre de 1 Bq.L⁻¹ au niveau de la centrale de Gravelines ; cette dernière valeur est encore 5 à 10 fois supérieure au bruit de fond hors influence (Masson *et al.*, 2005). Les activités volumiques moyennes de HTO et d'OBT dans différentes espèces marines (algues, mollusques, crustacés) sont dans ces eaux de l'ordre de 10 Bq.L⁻¹ d'eau de combustion. Le tritium dans ces organismes est présent à plus de 85% sous forme libre (IRSN, 2009).

De manière générale, que ce soit hors influence (1 à 3 Bq.kg⁻¹ frais ou Bq.L⁻¹), ou sous influence des installations nucléaires (5 à plus de 100 Bq.kg⁻¹ frais ou Bq.L⁻¹), les activités environnementales du tritium

sont les plus élevées de celles de tous les radionucléides artificiels, après celles mesurées pour le carbone 14 et le krypton 85 autour de La Hague.

Métrologie, techniques d'analyse, limites de détection

La quantification du ^3H dans un échantillon de l'environnement peut être réalisée soit par mesure d'activité, soit par comptage des atomes de ^3He issus de la désintégration du tritium.

Mesure d'activité

Principe : le tritium contenu dans la prise d'essai est extrait sous forme d'eau tritiée mesurée par scintillation liquide (émission β^- de ^3H). Cette méthode est applicable pour le tritium libre et pour le tritium organiquement lié. Le protocole d'analyse est alors fonction de la nature et de la forme de l'échantillon (Cossonet et Gurrarian, 2009 ; figure 3).

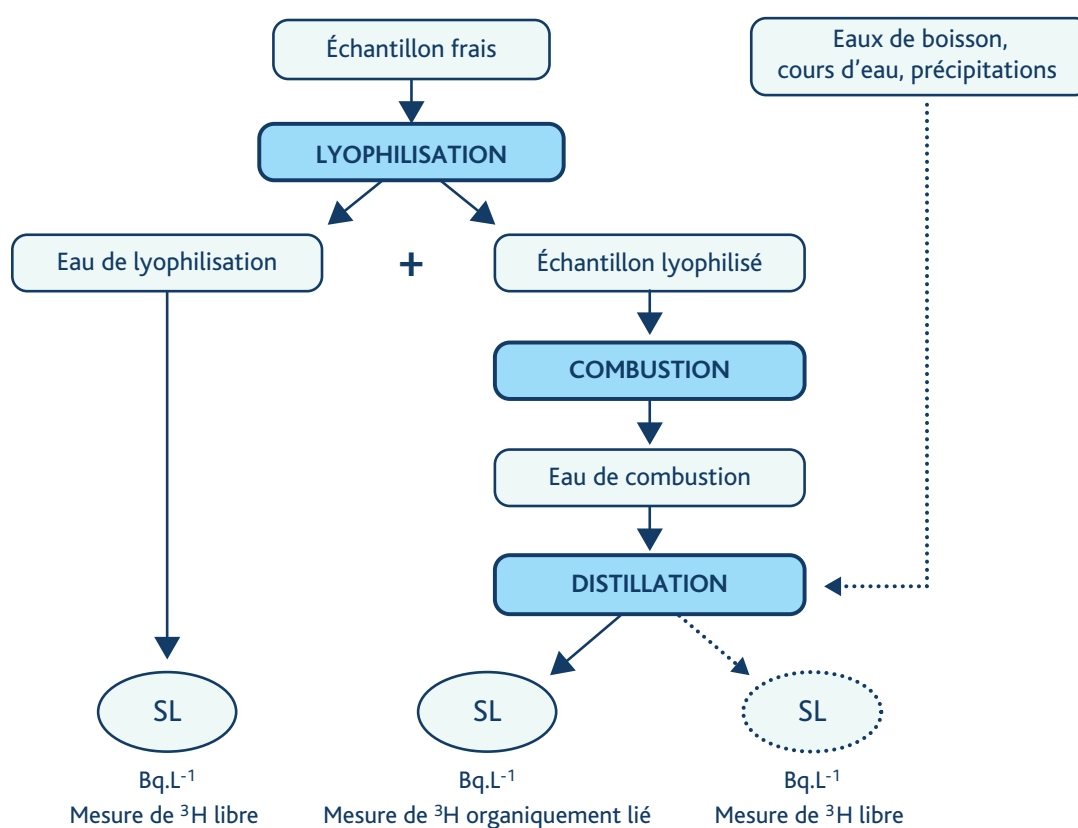


Figure 3 : protocole d'analyse des échantillons pour la mesure du tritium (SL : scintillation liquide).

Préparation des échantillons

Les échantillons d'eau sont mesurables directement ou après distillation (AFNOR, 2000a et 2000b ; ISO, 2009). Les autres matrices subissent une transformation (barbotage pour les gaz, lyophilisation, combustion, distillation).

Les résultats d'analyses sont donc exprimés en Bq.L^{-1} d'eau naturelle, de distillation, de lyophilisation ou de combustion. Ils sont souvent convertis pour les matrices biologiques en Bq.kg^{-1} frais.

Les limites de détection des compteurs de scintillation liquide standards ou très bas bruit de fond, se situent respectivement vers 5 et 1 Bq.L^{-1} pour des échantillons d'eau non enrichis (Belot *et al.*, 1996). Pour abaisser ces limites, l'eau tritiée peut être artificiellement enrichie du tritium qu'elle contient, selon deux méthodes (Mook, 2000). La méthode la plus répandue consiste, après avoir augmenté la conductivité de l'eau par ajout de Na_2O ou NaOH , à la décomposer par électrolyse. Le fractionnement isotopique de l'hydrogène est élevé, 90 % de ^3H de l'échantillon reste dans l'eau. Ainsi, si le volume d'eau diminue d'un facteur 10, l'enrichissement est d'environ un facteur 9. À la fin de l'électrolyse, l'échantillon est distillé

pour supprimer l'électrolyte avant la mesure d'activité. La seconde méthode (enrichissement thermique) est relativement complexe à mettre en œuvre et peu de laboratoires peuvent envisager de l'appliquer.

La mesure du tritium libre (HTO) est délicate et sujette à de nombreux biais. En raison des échanges rapides et permanents avec la vapeur d'eau de l'air, la teneur en tritium libre d'un échantillon ne rend compte que de l'activité de son milieu ambiant dans les heures qui ont précédé sa collecte. En règle générale, il convient de confiner avec soin l'échantillon prélevé durant toutes les étapes de son traitement, afin de limiter au maximum la « pollution » de l'échantillon par de l'air plus ou moins tritié que lui (cf. § échantillonnage).

L'analyse du tritium libre des matrices biologiques nécessite d'extraire par lyophilisation l'eau de l'échantillon, dont la mesure par scintillation fournit un résultat exprimé en Bq.L^{-1} d'eau avec les mêmes limites de détection que précédemment. Sa conversion en Bq.kg^{-1} frais s'appuie sur la teneur en eau du produit frais, extrêmement variable suivant les matrices (de l'ordre de $0,9 \text{ L.kg}^{-1}$ pour du lait, $0,05 \text{ L.kg}^{-1}$ pour des céréales).

L'analyse du tritium lié à la matière organique (OBT) se fait également par scintillation liquide à partir de l'eau issue de la combustion de cette matière organique (en pratique, la matière sèche), qui permet d'en extraire le tritium lié par oxydation catalytique des gaz de combustion. En l'état de l'art actuel, la mesure du tritium lié est faite indistinctement sur la somme des deux composantes échangeable et non échangeable.

Les résultats, exprimés à l'origine en Bq.L^{-1} d'eau de combustion, peuvent être convertis en Bq.kg^{-1} frais par l'application de facteurs multiplicatifs moins variables que les teneurs en eau des produits frais (1 kg de matière organique sèche produit approximativement 0,6 kg d'eau de combustion).

La qualité de la mesure du tritium lié dépend très largement des caractéristiques de la combustion et de la prise d'essai traitée, liées aux dispositifs de combustion dont les plus répandus sont l'oxydiser, le pyroxydiser et la bombe de Parr.

Principe de fonctionnement de l'oxydiser

La combustion de l'échantillon à $900 \text{ }^\circ\text{C}$ avec catalyseurs produit de la vapeur d'eau tritiée, récupérée par condensation⁽²⁾ sous forme d'eau de combustion. La prise d'essai est de l'ordre de 0,2 à 0,5 g d'échantillon déshydraté.

Compte tenu des faibles quantités d'eau de combustion obtenues, cette méthode conduit à des limites de détection qui peuvent être très élevées : de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de Bq.L^{-1} d'eau de combustion. Les incertitudes peuvent être importantes et les mesures poser des problèmes de reproductibilité liés à l'insuffisante représentativité de la prise d'essai, en particulier dès que les échantillons sont hétérogènes.

Afin d'abaisser la limite de détection, de diminuer les incertitudes et de fournir une meilleure représentativité de l'aliquote par rapport à l'échantillon prélevé, des chambres à combustion plus grandes (four tubulaire pyroxydiser) peuvent être utilisées. Il est alors possible d'obtenir des limites de détection similaires à celles obtenues pour le tritium libre ($1,5$ à 3 Bq.L^{-1}) et des incertitudes plus faibles.

Principe de fonctionnement du pyroxydiser

Sur le même principe que celui de l'oxydiser, le pyroxydiser permet de traiter des échantillons de quelques dizaines de grammes. La combustion se déroule en deux étapes, une pyrolyse sous argon suivie d'une oxydation sous oxygène.

L'eau produite est piégée à froid, puis distillée pour limiter le « quenching » en scintillation liquide. L'activité en ^3H 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.

15 à 40 g d'échantillon sec, selon sa nature, sont traités pour récupérer au moins 10 g d'eau, masse optimale pour la mesure par scintillation liquide. Dans ces conditions et pour un temps de comptage de 1 000 minutes, la limite de détection atteinte est de l'ordre de 1 Bq.L^{-1} d'eau de combustion.

Principe de fonctionnement de la bombe de Parr

La combustion de type flash est obtenue par application d'une très haute tension à l'échantillon, en présence d'oxygène. Selon les matrices, les prises d'essais peuvent être de plusieurs grammes.

² Le CO_2 peut aussi être recueilli pour le dosage éventuel de ^{14}C (voir fiche correspondante).

Comptage d'atomes

Principe : le tritium présent dans un échantillon se désintègre en produisant des atomes de ^3He qui sont comptés (Jean-Baptiste *et al.*, 2010). C'est une méthode de choix pour analyser avec une très grande sensibilité le tritium dans un grand nombre d'échantillons, si un délai d'attente de plusieurs mois n'est pas rédhibitoire.

Mesure de ^3He par spectrométrie de masse

L'échantillon, dégazé, est stocké pour permettre la re-croissance de ^3He pendant une durée dépendant de la limite de détection à atteindre. La teneur de ce gaz rare est ensuite comptée par spectrométrie de masse.

Des limites de détection de l'ordre de 0,01 à 0,1 Bq.L⁻¹ peuvent être obtenues (0,1 Bq.L⁻¹ en routine pour des échantillons de quelques dizaines de gramme et un temps de stockage d'environ 3 mois).

La technique, qui ne nécessite ni lyophilisation, ni combustion, est non destructive de l'échantillon et ne rend pas nécessaire l'usage de technique d'enrichissement.

Échantillonnage

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

Dans l'air, le tritium libre peut être prélevé par aspiration à travers un volume connu d'eau à faible teneur en tritium, ou à travers des colonnes de desséchant solide (*e.g.*, silicagel). Connaissant le volume total d'air échantillonné, la concentration du tritium libre dans l'air en est déduite. Une autre méthode, mise au point par l'IRSN, consiste à prélever directement la vapeur d'eau de l'air par condensation sur un piège froid. Ce système baptisé PREVAIR permet de collecter en quelques minutes une quantité suffisante pour la mesure, sans diluer la vapeur d'eau dans l'eau du collecteur et sans étape de désorption.

Dans les eaux continentales et marines, le plus souvent, les échantillons sont collectés de manière manuelle dans des récipients parfaitement étanches, si possible en verre. Les précipitations doivent elles être isolées de la vapeur d'eau ambiante par un film d'huile minérale ou d'octane, à ajouter dans les collecteurs de précipitation.

Les sols meubles (*e.g.* sols cultivés), peuvent être échantillonnés par carottage, les tubes de prélèvement étant ensuite fermés de façon étanche et conservés au congélateur avant analyse. Pour les végétaux, l'échantillon est si possible introduit directement dans le récipient où il est ultérieurement traité. Si un stockage intermédiaire s'impose, il est recommandé de congeler les échantillons dans des conteneurs étanches.

Mobilité et biodisponibilité en milieu terrestre

Atmosphère

Les formes les plus abondantes du tritium dans l'atmosphère sont par ordre d'importance décroissante : l'eau tritiée (HTO), l'hydrogène tritié (HT) et le méthane tritié (CH₃T). La conversion dans l'atmosphère de ces dernières formes en HTO serait très lente, voire négligeable dans le cas de HT.

À l'interface sol-atmosphère, les échanges de tritium se font dans les deux sens, de l'air vers le sol (dépôt) et du sol vers l'air (ré-émission par évaporation). La figure 4 schématise le cheminement du tritium dans l'environnement terrestre.

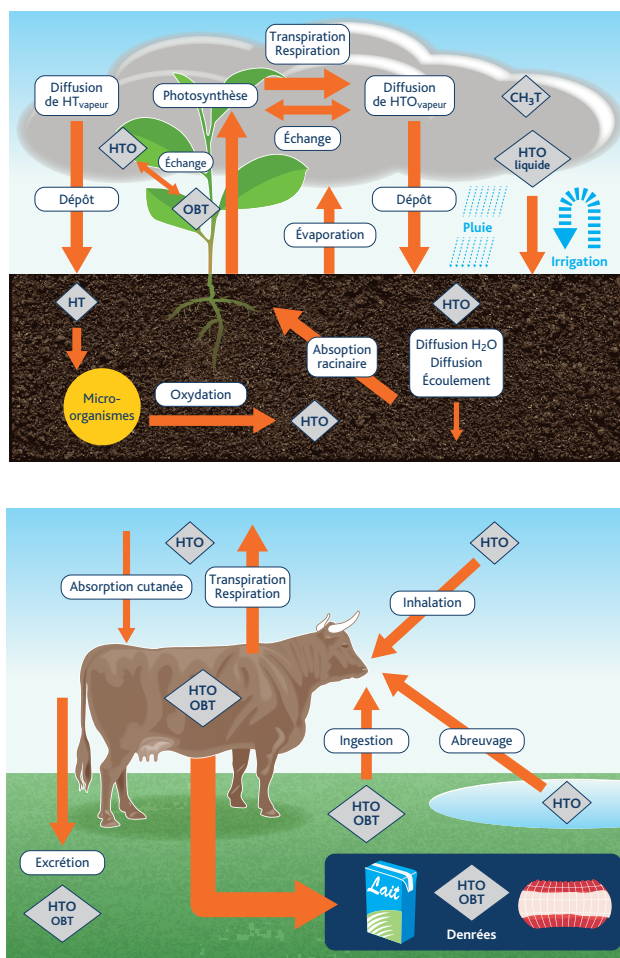


Figure 4 : transfert du tritium en milieu terrestre aux interfaces air-sol-végétaux et chez les animaux, incluant le transfert aux produits alimentaires.

Le dépôt au sol du tritium atmosphérique s'effectue par dépôt sec ou humide (pluie). L'hydrogène et le méthane tritiés sont toutefois peu entraînés par la pluie en raison de leur faible solubilité.

Sols

Au contact et dans les premiers centimètres du sol, l'hydrogène tritié se transforme rapidement en eau tritiée, le taux de conversion augmentant avec la température du sol et sa teneur en eau, dans la limite de 46 °C et 25 % d'humidité. Ce phénomène est attribué à la présence de micro-organismes qui peuvent oxyder HT. La vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère se dépose 10 à 100 fois plus vite que HT, selon un processus rapide d'échange avec la vapeur d'eau présente dans les pores des couches superficielles du sol, entre 2 et 8 cm environ (Nogushi et Yokoyam, 2003 ; Yokoyama *et al.*, 2004). La sécheresse du sol et la présence de végétation ralentissent ces échanges.

La majeure partie du tritium déposé dans le sol ne fait que transiter. Une grande partie de l'eau tritiée est ainsi réémise dans l'atmosphère par évaporation, à une vitesse évaluée entre 5 à 10 % par minute jusqu'à 1 % par seconde selon les conditions. La fraction ainsi relâchée dans l'atmosphère reste cependant très mal connue. Une partie est absorbée par les racines des végétaux et une faible part migre rapidement dans les horizons sous-jacents (Choi *et al.*, 2000 ; Choi *et al.*, 2007). Cette dernière fraction est elle aussi mal connue, d'autant qu'elle varie significativement en fonction des caractéristiques hydrauliques du sol et des conditions climatiques.

Le comportement du tritium organiquement lié dans le sol n'est pas bien connu. Une discrimination isotopique favorable au tritium a été observée dans les acides humiques et fulviques (Wierczinski *et al.*, 2005). Les processus relatifs à cette fraction du tritium sont considérés comme lents (Balesdents et Recous, 1997 ; Momoshima *et al.*, 1999). En France, le tritium organique est généralement considéré comme négligeable dans les sols cultivés, dont les teneurs en humus sont relativement faibles.

Globalement, le sol n'est pas un compartiment d'accumulation pour le tritium.

Végétaux

Le tritium sous forme d'hydrogène tritié n'est pas absorbé par la végétation (figure 4). Le tritium sous forme d'eau tritiée est au contraire très bien absorbé par les plantes, par échange avec la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère pour la voie foliaire et à partir de l'eau tritiée du sol par voie racinaire.

L'absorption par voie foliaire se produit *via* les stomates et peut être ainsi liée à l'indice de surface foliaire, lui-même corrélé à l'intensité de la photosynthèse (Melintescu et Galeriu, 2005). L'activité en tritium des feuilles reste toujours inférieure à celle de la vapeur d'eau de l'atmosphère, en raison des phénomènes de dilution liés aux échanges d'eau de la plante avec le sol. Les échanges sont très rapides. Après une contamination ponctuelle, la teneur en eau tritiée des feuilles diminue de plusieurs ordres de grandeur en quelques heures (Choi *et al.*, 2002 ; Keum *et al.*, 2006).

Suite à un transfert par voie racinaire, le temps de résidence dans les plantes est plus long (quelques jours) et est fonction de celui du tritium dans le sol (Belot *et al.*, 1996).

Une partie du tritium absorbé est incorporée à la matière organique de la plante par photosynthèse, avec une discrimination isotopique légèrement défavorable pour le tritium. Entre 10 et 30 % environ de cette fraction organique est considérée comme échangeable (Belot *et al.*, 1996 ; Pointurier *et al.*, 2004). En l'absence de variation d'activité du tritium ambiant, le tritium dans le végétal est à l'équilibre isotopique et le ratio OBT/HTO de l'ordre de 0,9. Toutefois, les mécanismes d'intégration du tritium à la matière organique des végétaux peuvent conduire à une rémanence plus ou moins longue du tritium dans certains organes. La connaissance de ces mécanismes reste cependant encore parcellaire.

Animaux

Chez les animaux, l'incorporation de tritium résulte essentiellement de l'ingestion et de l'absorption de vapeur d'eau par inhalation et passage à travers la peau (figure 4). En tant que gaz inerte, l'hydrogène tritié (HT) est peu soluble dans l'eau ou les fluides corporels. Son assimilation est environ 10 000 fois plus faible que sous forme d'eau tritiée. Le tritium sous forme de HTO est très facilement absorbé par inhalation : 99 % sont retenus par les animaux en quelques secondes. À l'intérieur du corps des animaux, l'eau tritiée diffuse librement et rapidement et s'équilibre avec les fluides corporels en quelques minutes. L'absorption par la peau est pratiquement égale à l'absorption par inhalation. L'absorption d'eau tritiée se fait également par ingestion d'eau d'abreuvement ou par ingestion de l'eau des aliments. L'eau tritiée ainsi ingérée apparaît en quelques minutes dans la circulation sanguine, ainsi que dans les divers organes, fluides et tissus des animaux. Le tritium peut être aussi absorbé sous forme de nourriture contenant du tritium dit organique. Celui-ci est majoritairement (97 % d'après modélisation) transformé dans les animaux en eau tritiée, le reste est incorporé directement dans la fraction organique du corps (voir synthèse dans Belot *et al.*, 1996). Cette proportion peut être significativement différente en fonction de la molécule organique auquel le tritium est associé dans la nourriture et de sa concentration spécifique dans cette molécule, l'AIEA (2010) considérant par exemple une fraction de 50 %.

Le tritium est généralement éliminé sous forme d'eau tritiée, avec une demi-vie de quelques jours pour la majeure partie à quelques dizaines ou centaines de jours pour les quelques pourcents restants. L'élimination de cette fraction, correspondant à la fraction organiquement liée, dépend du métabolisme des molécules organiques (voir synthèse dans Belot *et al.*, 1996).

Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes d'eau douce

Généralités

Dans les hydrosystèmes, le tritium est présent quasi uniquement sous forme HTO (99 %), son comportement suit alors celui des flux hydriques (figure 5). Les échanges entre ces hydrosystèmes et l'atmosphère sont gouvernés par les processus naturels de changement de phase (évaporation, condensation, etc.) et de précipitation. Le transfert du tritium dépend alors de ses concentrations respectives dans les milieux air et eau, la phase condensée étant faiblement enrichie du fait de la discrimination isotopique. Les échanges de tritium entre eau et sédiment sont eux aussi essentiellement régis par les flux hydriques, le tritium n'ayant qu'une faible affinité pour les particules solides.

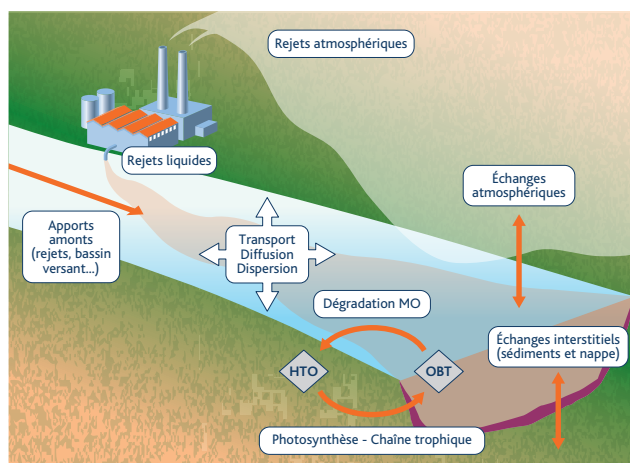


Figure 5 : principaux mécanismes de dispersion et de transfert du tritium sous forme libre au sein des hydrosystèmes.

Les connaissances relatives au comportement du tritium dans les organismes aquatiques sont limitées et relativement anciennes. Par ailleurs, il n'y a pas de raison de distinguer les organismes aquatiques des organismes terrestres au regard du transfert du tritium *via* l'un des nombreux processus physiologiques qu'ils partagent.

Sous sa forme HTO, le tritium est très facilement transféré aux végétaux, ainsi qu'aux animaux, pour lesquels s'ajoute la voie alimentaire. La fraction échangeable du tritium organique s'équilibre en quelques heures avec l'environnement. Sa fraction non échangeable présente un comportement différent, fonction de la nature des molécules organiques marquées, avec des cinétiques plus lentes, pouvant conduire à une rémanence plus ou moins longue du tritium dans les organismes.

Végétaux

L'essentiel des informations provient des études sur algues. L'incorporation de tritium dans la matière organique de ces végétaux résulte de l'utilisation d'eau tritiée lors de la photosynthèse (réaction simplifiée : $\text{CO}_2 + \text{HTO} \rightarrow \text{CHTO} + \text{O}_2$). Mais ces plantes sont également capables d'utiliser certains composés organiques tritiés, dont le devenir dépend étroitement de leur nature (Blaylock *et al.*, 1986 ; Strack *et al.*, 1980 ; Diabaté et Strack, 1993).

Les rares données relatives au transfert de tritium dans des plantes supérieures mettent en évidence pour des végétaux semi-aquatiques un déséquilibre entre l'organisme et l'eau vraisemblablement lié aux échanges entre le feuillage émergé et le tritium atmosphérique (Harrison et Korranda, 1971).

Animaux

Un équilibre est très rapidement atteint entre l'eau tritiée environnante et l'eau constitutive des organismes du fait de la régulation de leur bilan hydrique par le processus de respiration/osmorégulation. Les périodes biologiques associées sont inférieures à la journée (Elwwod, 1971). Concernant le tritium organiquement lié, les périodes biologiques sont plutôt de l'ordre de la dizaine de jours.

Assimilable par la voie directe, le tritium organiquement lié est cependant majoritairement incorporé par voie trophique. Le métabolisme de cette fraction organique conduit alors majoritairement à la production d'eau tritiée, selon une cinétique dépendant de la nature des molécules organiques tritiées. Tous les processus physiologiques liés au métabolisme hydrominéral des organismes aquatiques sont susceptibles de modifier la période biologique du tritium sous forme OBTO, notamment la reproduction. Ainsi, la fraie des moules contribuerait à l'élimination de l'OBTO incorporé par l'animal (Yankovich *et al.*, 2006).

Au bilan, le problème du tritium réside essentiellement dans le manque de connaissances sur le comportement des formes organiques. Le tritium des composés organiques des effluents liquides des installations nucléaires ou d'autres industries peut comporter une biodisponibilité particulière présentant des cinétiques spécifiques d'assimilation et d'excrétion par les organismes qu'il est difficile de définir même sur le plan théorique, en l'absence de connaissances supplémentaires sur la nature de ces composés et de leur spéciation physico-chimique une fois rejeté dans l'environnement aquatique.

Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes marins

Généralités

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 quant à eux 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'un phénomène de 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.

Jusqu'à présent, aucun phénomène de bioaccumulation du tritium n'a été constaté dans les organismes marins sur les côtes françaises de la Manche. 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, sont en très grande majorité sous forme de HTO.

À la lumière des résultats observés dans le chenal de Bristol (McCubbin *et al.*, 2001), il apparaît que de faibles quantités de tritium rejetées 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. La connaissance des formes chimiques du tritium présentes dans l'environnement aquatique est donc primordiale.

Végétaux (algues brunes)

Les transferts entre l'eau de mer et la matière organique n'étant pas instantanés, les variations de concentration dans les algues ne suivent pas immédiatement celles de l'eau de mer. 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). Ce phénomène a été observé pour d'autres radionucléides, comme le ^{137}Cs (Fiévet et Plet, 2003) et le ^{14}C (Fiévet *et al.*, 2006). Le rapport moyen $[OBT]_{\text{algue}}/[HTO]_{\text{eau de mer}}$ varie de 0,8 à 1,3. L'écart par rapport à l'unité peut s'expliquer par le déséquilibre induit par les différences de cinétique.

Animaux

Les résultats obtenus en Manche pour les crustacés, mollusques et poissons ne diffèrent pas sensiblement de ceux obtenus pour les algues que ce soit en termes de concentration ou du rapport $[OBT]_{\text{espèce}}/[HTO]_{\text{eau de mer}}$: 0,7 - 1,9. Ils ne traduisent pas un effet de bioaccumulation et reflètent la forme chimique HTO des rejets industriels. Dès lors que le nombre de mesures disponibles sera suffisant pour autoriser leur utilisation robuste de façon conjointe avec les modèles de dispersion, le calcul des cinétiques de transfert entre l'eau de mer et les espèces vivantes sera possible.

Les résultats obtenus en baie de Cardiff (McCubbin *et al.*, 2001) avec les rejets de molécules marquées de l'usine Amersham montrent que pour certains composés organiques ce rapport $[OBT]_{\text{poisson}}/[HTO]_{\text{eau de mer}}$ peut atteindre plus de 3 000 ; il convient, dans ce cas, de prendre en compte la nature des molécules marquées, le mode d'introduction dans le milieu et les voies de transfert concernées.

Transfert du tritium entre l'eau et l'atmosphère

Le tritium rejeté dans la mer par les installations nucléaires peut être transféré à la terre par l'évaporation d'eau de mer. Maro *et al.*, (2005) ont 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. Les flux de tritium de l'eau à l'atmosphère dus aux rejets en milieu marin de l'usine de retraitement de La Hague ont été estimés en moyenne à $2,7 \cdot 10^7 \text{ Bq} \cdot \text{km}^{-2} \cdot \text{j}^{-1}$ pour la surface correspondant à la baie de Seine (4 400 km²). La quantité de tritium transférée dans l'atmosphère en 2002 peut être évaluée à $3,9 \times 10^{13} \text{ Bq}$, soit 0,3 % de la quantité de tritium rejeté en mer par l'usine de La Hague cette année-là.

Mobilité et biodisponibilité dans les écosystèmes semi-naturels

Ce paragraphe est basé sur la revue de littérature menée au plan international dans le cadre de la révision du guide relatif aux valeurs de paramètres pour la prédiction du transfert des radionucléides dans les environnements terrestres et aquatiques continentaux tempérés, entreprise à l'initiative de l'AIEA (AIEA, 2010).

Forêts

Il n'y a pas d'information particulière relative à la mobilité et à la biodisponibilité du tritium dans les écosystèmes forestiers.

Écosystèmes arctiques

Il n'y a pas d'information particulière relative à la mobilité et à la biodisponibilité du tritium dans les écosystèmes arctiques.

Écosystèmes alpins

Il n'y a pas d'information particulière relative à la mobilité et à la biodisponibilité du tritium dans les écosystèmes alpins.

Dosimétrie environnementale

Les effets d'une exposition aux rayonnements ionisants sont corrélés à la quantité d'énergie absorbée dans l'organisme cible, exprimée par un débit de dose ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$). Son évaluation est obtenue par l'application de coefficients de conversion de dose (DCC, $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{unité}^{-1}$ de masse ou de volume) aux concentrations du radionucléide dans les milieux d'exposition ou dans les organismes ($\text{Bq}\cdot\text{unité}^{-1}$ de masse ou de volume).

Les DCC caractéristiques du ^3H ont été déterminés hors filiation et sans pondération en fonction du type de rayonnement (RBE⁽³⁾) avec le logiciel EDEN (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2006) dans sa version 2.3, en considérant forme, dimension et composition chimique des organismes et de leurs milieux de vie, ainsi que leurs relations géométriques. Les espèces modèles considérées ont été choisies à titre d'illustration.

Sauf cas particulier de la fétuque (10^{-4} $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais), l'exposition interne est généralement caractérisée par des DCC de l'ordre de 10^{-6} $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais.

L'exposition externe est caractérisée par des DCC inférieurs, dont l'ordre de grandeur varie selon les organismes entre 10^{-16} et 10^{-7} $\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ou $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$.

Pour plus de détails sur la manière de calculer les DCC, consulter la fiche « dosimétrie environnementale ».

Toxicologie environnementale

Chimiotoxicité de l'élément

Sans objet.

Radiotoxicité de l'isotope radioactif ^3H

Émetteur β de faible énergie, le tritium possède un faible pouvoir pénétrant à l'origine d'un stress radiatif principalement lié à l'irradiation interne en cas d'incorporation du radionucléide. Cependant, cette faible énergie conduit à la concentration locale de son dépôt susceptible d'amplifier les conséquences biologiques de l'incorporation de tritium dans la matière vivante. Les radiations ionisantes émises alors peuvent provoquer diverses lésions de l'ADN traduites par l'organisme exposé en termes d'effets physiologiques (comportement, reproduction, atteintes génétiques, etc.) (Straume et Carsen, 1993). Ces lésions sont pour le tritium essentiellement des ruptures de l'ADN sur les deux brins de la molécule, appelées cassures

³ Relative Biological Effectiveness : exprime l'efficacité relative des différents types de rayonnement à produire un même effet biologique.

double brin (Moiseenko *et al.*, 2001), à l'origine d'un risque accru d'induction et de transmission entre générations d'altérations génétiques.

Les effets consécutifs à l'exposition de la matière vivante à un rayonnement ionisant dépend de l'énergie de celui-ci mais aussi de sa nature (α , β , γ), prise en compte par le facteur de pondération dit RBE (*Relative Biological Effectiveness*). Il exprime l'efficacité relative des différents types de rayonnement à produire un même effet biologique. Pour les espèces non-humaines, six études *in vivo* seulement, sur la reproduction chez les vertébrés (mammifère et poisson), donnent des valeurs d'EBR du tritium relatives aux effets déterministes, comprises entre 1 et 3,5 (IRSN, 2009). La pauvreté de la diversité des espèces et de leur stade de vie, ainsi que des critères d'effet déterministes explorés jusqu'à présent, souligne le manque de connaissance sur le sujet. Lors du calcul des doses reçues par les espèces non-humaines exposées au tritium sous forme HTO, la variabilité de l'EBR, en supposant que ce facteur varie entre 1 et 3, affecte le résultat de moins d'un ordre de grandeur, ce qui est peu au regard des incertitudes plus importantes qui existent dans la chaîne de calcul dosimétrique (facteurs de transfert notamment) et dans la détermination des effets biologiques et écologiques en résultant.

Parallèlement aux données sur l'EBR en tant que tel, les connaissances sur les mécanismes d'action du tritium font également défaut actuellement.

En résumé ...

En tant qu'isotope de l'hydrogène, le tritium est intimement lié au cycle de cet élément dans l'environnement. 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 animaux. Sous la forme d'eau tritiée HTO, ce radionucléide est extrêmement mobile dans l'environnement et dans tous les systèmes biologiques, et de ce fait rapidement intégré dans de nombreux cycles de la géosphère et de la biosphère. En situation d'équilibre, il ne semble pas s'accumuler préférentiellement dans tel ou tel composant environnemental ou biologique.

Pour l'évaluation de l'impact des rejets chroniques, les radioécologistes considèrent que le tritium suit le cycle de l'eau. Les modèles spécifiques au tritium sont simples et fondés sur des conditions de rejets permanents, de concentrations constantes dans l'air et le sol quelle que soit la profondeur, et l'atteinte d'une situation d'équilibre.

Si le tritium est introduit dans l'environnement sous la forme de molécules organiques tritiées, le devenir du tritium sera celui de la molécule organique considérée jusqu'à ce qu'elle soit dégradée par des processus biologiques ou physico-chimiques. Le comportement du tritium sera ensuite celui des produits de dégradation (HTO essentiellement). Compte tenu de la variété des molécules organiques pouvant être associées à du tritium, il n'est pas possible de dresser un inventaire du comportement de ces molécules dans l'environnement.

La toxicité pour l'environnement du ^3H n'est liée qu'à ses émissions radioactives de type β pur de faible énergie. Elle résulte donc principalement de processus d'incorporation.

Récapitulatif des méthodes de mesure

	Oxydiser	Pyroxydiser	Spectrométrie de masse ^3He
Prise d'essai (g sec)	0,2 à 0,5	15 à 40	De quelques g à plusieurs centaines de g selon l'objectif de la LD
Limite de détection (Bq.L^{-1})	280	1	0,01
Temps de comptage* (mn)	200	1000	Sans objet
Temps moyen nécessaire à l'analyse d'un échantillon	2 jours	5 jours	1 semaine de préparation de l'ensemble de stockage 1 jour de mesure après plusieurs mois de stockage

* Temps de comptage associé à la limite de détection.

Modèles radioécologiques usuels (à l'équilibre) : milieu terrestre

Les évaluations « classiques » de l'impact radioécologique du tritium dans les écosystèmes terrestres reposent sur le concept d'activité spécifique, formulé en termes de concentration du tritium dans l'eau, plutôt que du rapport de l'activité en tritium par la masse d'hydrogène dans un compartiment donné. La concentration en tritium organique (OBT) s'exprime en termes d'activité d'équivalent en eau de la matière sèche (*i.e.* la quantité d'eau produite après complète combustion de la matière sèche).

Sols

En première approche, il est possible d'utiliser un coefficient multiplicatif de la concentration en tritium de l'air afin d'estimer la concentration en eau tritiée de la couche racinaire d'un sol soumis à un dépôt sec et humide provenant du panache atmosphérique, selon l'équation suivante (AIEA, 2010) :

$$C_{HTOsol} = CR_{s-a} \cdot \frac{C_{3Hair}}{H_a}$$

C_{HTOsol}	Concentration en eau tritiée de la couche racinaire du sol (Bq.L ⁻¹)
C_{3Hair}	Concentration du tritium dans l'air (Bq.m ⁻³)
H_a	Humidité absolue de l'air (L.m ⁻³)
CR_{s-a}	Rapport de la concentration en eau tritiée du sol et de l'air (s.d) $\approx 0,3^{(4)}$

Végétaux

Dans le cas d'une exposition prolongée où les concentrations en tritium de la vapeur d'eau de l'air et de l'eau de la couche racinaire du sol sont approximativement constantes pendant une longue période de temps, la concentration en eau tritiée dans les végétaux est estimée à partir de l'équation suivante, qui considère explicitement une contribution par voie atmosphérique (*via* la diffusion à travers les stomates foliaires) et une contribution par voie racinaire (*via* la transpiration) (Murphy, 1984) :

$$C_{HTOv} = f_{eau} \cdot \left[HR \cdot \frac{C_{3Hair}}{H_a} + (1 - HR) \cdot C_{HTOsol} \right] / \gamma$$

C_{HTOv}	Concentration en eau tritiée du végétal (Bq.kg ⁻¹ frais)
C_{3Hair}	Concentration du tritium dans l'air (Bq.m ⁻³)
C_{HTOsol}	Concentration en eau tritiée de la couche racinaire du sol (Bq.L ⁻¹)
HR	Humidité relative de l'atmosphère (s.d)
H_a	Humidité absolue de l'air (L.m ⁻³)
f_{eau}	Teneur en eau du végétal (L.kg ⁻¹ frais)
γ	Rapport entre la pression de vapeur de l'eau tritiée et celle de l'eau ($\gamma = HTO/H_2O = 0,909$)

L'expression précédente qui utilise les taux d'humidité relative s'applique spécifiquement aux feuilles des plantes, qui tirent la majorité de leur tritium de l'air. L'équation est conservative pour les fruits, racines et tubercules, qui tirent la majorité de leur tritium du sol, dont la contamination est moindre que celle de l'humidité de l'air dans le cas d'un rejet atmosphérique.

⁴ Ce paramètre est difficile à estimer, et dépend d'un grand nombre de facteurs locaux. La moyenne géométrique calculée à partir de données locales s'élève à 0,23, mais une valeur légèrement supérieure est utilisée comme référence en raison des incertitudes impliquées. Une valeur de 0,5 paraît conservative, même si des valeurs autour de 1 sont plausibles. Les données suggèrent que les régions du sud ou humides peuvent avoir des valeurs plus élevées. Des valeurs fondées sur des mesures locales devraient être utilisées, autant que possible (AIEA, 2010).

Proportion d'eau dans les végétaux terrestres (f_{wv} , en L.kg⁻¹ poids frais)

Catégorie de plantes	Nombre de données	Moyenne	Écart-type	Min.	Max.
Herbe ou fourrage vert	33	0,76	1,1	0,67	0,90
Légumes feuilles	88	0,92	1,0	0,84	0,97
Légumes racines	39	0,87	1,1	0,77	0,95
Légumineuses :					
- Graines	11	0,12	1,2	0,09	0,17
- Parties végétatives	16	0,81	1,1	0,69	0,91
Fruits	102	0,85	1,1	0,73	0,96
Céréales (incluant riz)	22	0,12	1,2	0,10	0,16
Tubercules	10	0,75	1,1	0,62	0,82
Ensilage	13	0,66	1,2	0,55	0,82

La concentration en tritium organique dans le végétal est estimée par la formulation suivante (AIEA, 2010) :

$$C_{OBTv} = \frac{(1 - f_{eau})}{f_{eau}} \cdot FE_v \cdot R_v \cdot C_{HTOv}$$

C_{OBTv}	Concentration en tritium organique du végétal (Bq.kg ⁻¹ frais)
C_{HTOv}	Concentration en eau tritiée du végétal (Bq.kg ⁻¹ frais). Quelle que soit la plante en question, il s'agit plus précisément de la concentration dans les feuilles, lieu principal de la production de matière sèche.
f_{wv}	Teneur en eau du végétal (L.kg ⁻¹ frais)
FE_v	Quantité d'eau produite par combustion d'un kilogramme de matière sèche du produit végétal (ou « facteur d'équivalent en eau », en L.kg ⁻¹ sec)
R_v	Facteur de partition pour les végétaux (s.d) $\approx 0,54^{(5)}$

Facteurs « équivalent en eau » pour les végétaux terrestres (FE_v , L.kg⁻¹ poids sec)⁽⁶⁾

Catégorie de plantes	Nombre de données	Moyenne	Écart-type	Min.	Max.
Légumes feuilles	10	0,51	1,1	0,47	0,55
Légumes racines	11	0,52	1,1	0,45	0,55
Légumes non feuilles	12	0,53	1,0	0,50	0,55
Autres	91	0,56	1,0	0,50	0,60

⁵ Les valeurs de ce paramètre doivent être déterminées empiriquement dans des conditions stationnaires. Les estimations les plus fiables proviennent d'expérimentations de laboratoire contrôlées, où la plante est exposée à une concentration en HTO qui est maintenue constante ou faisant l'objet d'une surveillance continue. Les valeurs obtenues dans ces expériences sont toutes inférieures à 1, avec une moyenne géométrique de 0,54 et un écart-type géométrique de 1,16 pour les cultures considérées (maïs, orge et luzerne). En l'absence d'autres informations, une valeur de 0,54 est appliquée par défaut à tous les types de plantes.

⁶ Le facteur « équivalent en eau » est difficile à mesurer mais peut se calculer de façon fiable à partir de la teneur en hydrogène des protéines, lipides et glucides (7 %, 12 % et 6,2 %, respectivement) et des fractions de protéines, lipides et glucides dans la matière sèche de la plante (AIEA, 2010). Les valeurs ainsi calculées varient peu entre les différentes catégories de plantes.

Animaux

Les animaux peuvent ingérer du tritium sous forme de HTO dans l'alimentation et l'eau potable et sous forme d'OBT présent dans la fraction organique de leurs aliments. L'inhalation et l'absorption cutanée sont également des voies possibles d'apport de HTO à l'animal. Le tritium organique échangeable et HTO s'équilibrent rapidement avec l'eau du corps de l'animal. La majeure partie du HTO apportée à l'animal reste sous forme de HTO, avec une petite fraction convertie en OBT. En revanche, environ la moitié du tritium apporté à l'animal sous forme d'OBT est convertie en HTO, avec l'autre moitié restant sous forme organique (AIEA, 2010).

Les concentrations en tritium dans les produits d'origine animale peuvent être estimées à partir d'un modèle métabolique (Galeriu *et al.*, 2007) selon lequel la principale variable de sortie est le rapport RC_{pa} de la concentration dans le produit animal à la concentration dans les aliments et eau potable ingérés et l'air inhalé. Des rapports de concentrations distincts ont été déterminés pour les apports en HTO et en OBT à l'animal. Les concentrations totales en tritium (HTO + OBT) dans le produit d'origine animale sont données par les équations suivantes (AIEA, 2010) :

$C_{pa}^{T-HTO} = RC_{pa}^{HTO} \cdot RC_f^{HTO}$ $C_{pa}^{T-OBT} = RC_{pa}^{OBT} \cdot RC_f^{OBT}$	
C_{pa}^{T-HTO}	Concentration en tritium du produit d'origine animale provenant de l'apport en HTO (Bq.kg ⁻¹ frais)
C_{pa}^{T-OBT}	Concentration en tritium du produit d'origine animale provenant de l'apport en OBT (Bq.kg ⁻¹ frais)
RC_{pa}^{HTO}	Rapport de concentration pour les apports en HTO (Bq.kg ⁻¹ frais /Bq.L ⁻¹)
RC_{pa}^{OBT}	Rapport de concentration pour les apports en OBT (Bq.kg ⁻¹ frais /Bq.kg ⁻¹ sec)
RC_f^{HTO}	Concentration moyenne en HTO apporté par l'eau ingérée <i>via</i> les aliments, la boisson et la respiration (Bq.L ⁻¹), en pondérant par la contribution de chaque voie
RC_f^{OBT}	Concentration moyenne en OBT ingérée (aliments, Bq.kg ⁻¹ sec)

RC_f^{HTO} est la somme des concentrations en HTO apporté à l'animal *via* les aliments, l'eau de boisson et la respiration (incluant l'absorption cutanée), pondérée par les contributions relatives de chacun de ces apports à l'apport d'eau total. De manière générale, l'inhalation représente environ 2-5 % des apports totaux en eau à l'animal, et l'eau métabolique environ 10 %. La fraction d'eau provenant de l'alimentation dépend du régime de l'animal et doit être définie par l'utilisateur.

RC_f^{OBT} est une moyenne pondérée qui inclut des aliments non contaminés, ainsi que des aliments contaminés, puisque les sources locales d'approvisionnement ne représentent qu'une fraction du total de l'alimentation animale dans l'agriculture industrielle moderne.

Les rapports de concentration pour différents produits d'origine animale en climat tempéré sont présentés dans les deux tableaux suivants. Pour chaque produit, la meilleure estimation du rapport de concentration est définie au regard de la masse spécifique de l'animal et des niveaux de production et d'apport présentés dans le tableau. Les intervalles de valeurs ont été calculés en tenant compte de la variabilité de la masse des animaux, du niveau de production et de l'alimentation. Les valeurs les plus élevées sont conservatives et doivent être utilisées pour des animaux élevés en climat froid ou ayant une forte teneur en matière grasse dans leurs produits.

Rapports de concentration pour les apports en HTO (RC_{pa}^{HTO})

Produits d'origine animale	Masse animale (kg)	Taux d'apport ($\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$)	Taux de production ($\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$ ou $\text{L}\cdot\text{j}^{-1}$)	Fraction OBT (f_{OBT})	RC_{pa}^{HTO} ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais par $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ absorbé)		
					Meilleure estimation	Min.	Max.
Lait							
Vache	550	14	15	0,04	0,87	0,81	0,92
Mouton	50	1,80	1,30	0,06	0,78	0,76	0,89
Chèvre	50	2,50	2,50	0,07	0,83	0,81	0,87
Viande							
Bœuf	500	9,30	0,70	0,11	0,66	0,64	0,82
Veau	160	4,85	0,80	0,08	0,69	0,64	0,82
Mouton	50	1,22	0,08	0,10	0,74	0,67	0,78
Agneau	20	1,00	0,20	0,08	0,78	0,60	0,81
Chèvre	50	1,20	0,08	0,10	0,67	0,62	0,81
Porc	100	2,70	0,80	0,13	0,67	0,61	0,77
Poule	2,50	0,12	0,01	0,10	0,76	0,70	0,80
Volaille	1,70	0,11	0,03	0,10	0,76	0,70	0,90
Œufs	2,50	0,15	0,05	0,08	0,76	0,63	0,81

Rapports de concentration pour les apports en OBT (RC_{pa}^{OBT})

Produits d'origine animale	Masse animale (kg)	Taux d'ingestion ($\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$)	Taux de production ($\text{kg}\cdot\text{j}^{-1}$ ou $\text{L}\cdot\text{j}^{-1}$)	Fraction OBT (f_{OBT})	RC_{pa}^{OBT} ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ frais par $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ MS ingérée)		
					Meilleure estimation	Min.	Max.
Lait							
Vache	550	14	15	0,47	0,24	0,17	0,37
Mouton	50	1,80	1,30	0,57	0,32	0,23	0,39
Chèvre	50	2,50	2,50	0,40	0,32	0,25	0,38
Viande							
Bœuf	500	9,30	0,70	0,80	0,40	0,35	0,53
Veau	160	4,85	0,80	0,72	0,35	0,31	0,45
Mouton	50	1,22	0,08	0,75	0,40	0,35	0,56
Agneau	20	1,00	0,20	0,78	0,55	0,35	0,67
Chèvre	50	1,20	0,08	0,60	0,43	0,36	0,46
Porc	100	2,70	0,80	0,74	0,64	0,45	0,77
Poule	2,50	0,12	0,01	0,55	0,50	0,42	0,60
Volaille	1,70	0,11	0,03	0,55	0,50	0,42	0,70
Œufs	2,50	0,15	0,05	0,78	0,64	0,53	0,69

La concentration en OBT dans le produit animal peut ensuite être estimée en multipliant la concentration totale par f_{OBT} , fraction de tritium total sous forme OBT dans le produit animal ; la concentration en HTO dans le produit animal est donc calculée en multipliant la concentration totale par $(1 - f_{\text{OBT}})$.

Transformations alimentaires

L'effet des transformations alimentaires est quantifié par un facteur de transfert, appelé aussi facteur de rétention, donnant la fraction de radionucléide retenue dans le produit après transformation.

Facteur de transfert par transformation alimentaire (Bq.kg⁻¹ frais de produit transformé par Bq.kg⁻¹ frais de produit brut)

	HTO	OBT
Mûres (lavées et mises en compote)	0,55	0,56
Fèves bouillies	0,28	0,69
Chou lavé et cuit à la vapeur	0,28	
Carottes lavées et bouillies	0,28	0,43
Pommes de terre nouvelles		
Brossées et bouillies	0,55	
Pelées et bouillies	0,22	
Pommes de terre de conservation		
Pelées et bouillies	0,55	
Pelées et rôties	0,21	0,74
Riz blanc bouilli	0,84	
Soja bouilli	0,77	
Farine de riz bouillie	0,69	
Farine de soja bouillie	0,74	

(AIEA, 2010)

Modèles radioécologiques usuels : eaux douces

Eaux et sédiments

La modélisation des processus physiques de transfert du tritium au sein des hydrosystèmes d'eau douce prend en compte la dispersion du tritium, décrite par les lois classiques de l'hydrodynamique au même titre que pour les autres radionucléides, à l'aide de modèles numériques de complexité variable. Les apports anthropiques directs, *i.e.* les rejets d'effluents liquides dans un milieu aquatique, constituent des données d'entrée pour la dispersion du tritium. Concernant les autres apports, principalement *via* le bassin versant, il existe peu de travaux sur les fonctions de transfert dans le cas du tritium.

Des modèles d'échanges sont proposés pour décrire les échanges avec l'atmosphère et les échanges avec l'eau interstitielle des sédiments (IRSN, 2009).

Échanges avec l'atmosphère. Ils s'effectuent principalement selon deux mécanismes : les échanges entre l'eau tritiée de l'hydrosystème et la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère, ainsi que 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 :

$\Theta_{HTO}^{pluie} = v_{pluie} \cdot [HTO]_{pluie}$	
Θ_{HTO}^{pluie}	Flux surfacique de tritium dû à la pluie (Bq. m ⁻² .s ⁻¹)
v_{pluie}	Intensité de la pluie (m.s ⁻¹)
$[HTO]_{pluie}$	Activité volumique du tritium dans l'eau de pluie (Bq.m ⁻³)

Concernant les échanges entre l'eau tritiée d'un hydrosystème et la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère, ils 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, 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) sursaturation.

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 :

$$\Theta_{HTO}^{evap} = \beta \cdot \Theta_{eau}^{evap} \cdot [HTO]_{hyd}$$

Θ_{HTO}^{evap}	Flux surfacique de tritium dû à l'évaporation ($Bq \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$)
Θ_{eau}^{evap}	Flux d'eau dû à l'évaporation ($L \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$)
$[HTO]_{hyd}$	Activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème ($Bq \cdot L^{-1}$)
β	Inverse du facteur de séparation isotopique (= 0,91)

Le flux d'évaporation d'une surface d'eau dépend de la température, de la pression atmosphérique, de la vitesse du vent et de l'écart entre les pressions de vapeur et de vapeur saturante de l'air. La formulation de Rohwer est souvent utilisée :

$$\Theta_{eau}^{evap} = 0.372 \cdot (1 - 0.000374 \cdot Pa) \cdot (1 + 0.6 \cdot u_{vent}) \cdot (e_s - e_a)$$

Pa	Pression atmosphérique (mbar)
u_{vent}	Vitesse du vent ($m \cdot s^{-1}$)
e_s	Pression de vapeur saturante d'eau dans l'air (mbar)
e_a	Pression de la vapeur d'eau dans l'air (mbar)

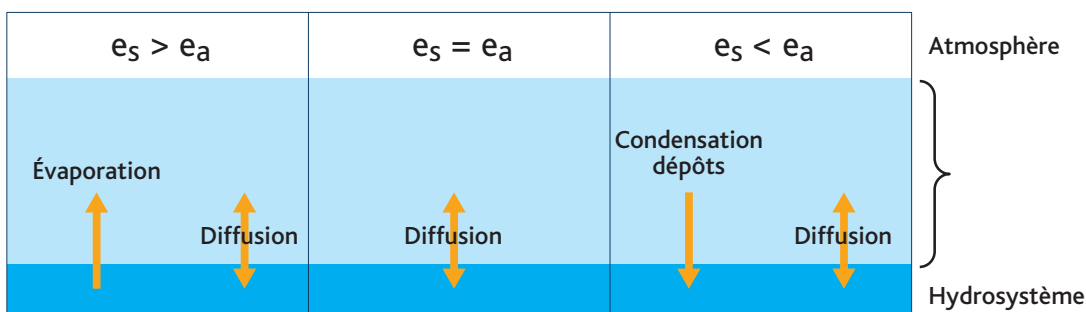
À la saturation ($e_s = e_a$), le bilan des flux hydriques entre l'atmosphère et l'hydrosystème est nul. Les échanges de tritium s'effectuent principalement par diffusion en fonction du gradient des concentrations de tritium dans l'eau de l'hydrosystème et dans la vapeur d'eau de l'atmosphère.

$$\Theta_{HTO}^{diff} = v_e \cdot ([HTO]_{atm} - [HTO]_{hyd})$$

Θ_{HTO}^{diff}	Flux de tritium par diffusion ($Bq \cdot m^{-2} \cdot j^{-1}$)
v_e	Vitesse d'échange du tritium entre l'atmosphère et l'hydrosystème ($m \cdot j^{-1}$)
$[HTO]_{hyd}$	Activité de tritium dans l'eau de l'hydrosystème ($Bq \cdot L^{-1}$)
$[HTO]_{atm}$	Activité de tritium de la vapeur d'eau dans l'atmosphère ($Bq \cdot L^{-1}$)

Pour des conditions de sursaturation ($e_s < e_a$), 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.

Résumé des processus intervenant en fonction des conditions de saturation



Échanges avec l'eau interstitielle des sédiments. Bien que les flux d'eau vers les sédiments puissent, dans certains cas, constituer la principale source de contamination des hydrosystèmes (Bolsunovsky et 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 :

$$[HTO]_{sed} = \frac{[HTO]_{its} \cdot n}{\rho_w \cdot n + \rho_s \cdot (1 - n)}$$

$[HTO]_{sed}$	Activité massique de tritium dans le sédiment (Bq.kg ⁻¹ (poids frais))
$[HTO]_{its}$	Activité volumique de tritium dans l'eau interstitielle (Bq.m ⁻³)
n	Porosité du sédiment (-)
ρ_w	Masse volumique de l'eau (kg.m ⁻³)
ρ_s	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}).

$$\Theta_{HTO}^{its} = v_{its} \cdot ([HTO]_{its} - [HTO]_{hds}) + \Theta_{HTO}^{nappe}$$

v_{its}	Vitesse d'échange avec l'eau interstitielle (m.s ⁻¹)
$[HTO]_{hds}$	Activité massique de tritium dans la colonne d'eau (Bq.m ⁻³)
Θ_{HTO}^{nappe}	Flux entre l'hydrosystème et la nappe (Bq.m ⁻² .s ⁻¹)

Soumis à la nature des sols (poreux, fracturés, imperméables, etc.) 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. À titre d'exemple, on citera la relation suivante (Higashino *et al.*, 2004) :

$$v_{hds} = \frac{3 \cdot \sqrt{3}}{2 \cdot \pi} \cdot 0.1 \cdot \left(\frac{v_w}{D_m} \right)^{\frac{2}{3}} \cdot u^* \approx 10^{-4} \cdot u$$

u^*	Vitesse de frottement de l'écoulement (m.s ⁻¹)
U	Vitesse moyenne de l'écoulement (m.s ⁻¹)
v_w	Viscosité cinématique de l'eau (10 ⁻⁶ m ² .s ⁻¹)
D_m	Coefficient de diffusion moléculaire du tritium ($\cong 10^{-9}$ m ² .s ⁻¹)

- v_{sed} correspond au ratio de D_{sed} , le coefficient de diffusion de la couche superficielle du sédiment, sur h_{sed} , l'épaisseur de cette couche (entre quelques mm et quelques cm).

$$v_{sed} = \frac{D_{sed}}{h_{sed}} \approx \frac{10^{-9} \cdot n}{h_{sed} \cdot (1 - \ln(n^2))}$$

D_{sed} (m².s⁻¹) est le coefficient de diffusion moléculaire au sein de la couche superficielle du sédiment. Il peut être relié à n , la porosité de cette couche (Shultz et Zabel, 2000).

Animaux

Tritium libre. Le principe de l'équilibre complet en termes d'activité spécifique, correspondant à une mise en équilibre rapide entre l'eau tritiée (HTO) du milieu aquatique environnant et le tritium libre de l'organisme vivant (TFWT), a été principalement appliqué aux poissons selon la formulation suivante (AIEA, 2010) :

$$[TFWT]_{poisson} = H_{poisson} \cdot [HTO]_{eau}$$

$[TFWT]_{poisson}$	Activité massique du tritium dans l'eau libre des poissons (Bq.kg ⁻¹)
$H_{poisson}$	Teneur en eau du poisson (0,78 L.kg ⁻¹) ;
$[HTO]_{eau}$	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.

Tritium organique. 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 à l'équilibre correspondant à cette situation sont présentés ci-dessous (IRSN, 2009).

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, qui traduit la mise à l'équilibre de la teneur en OBT dans l'organisme par rapport à l'activité de HTO dans le milieu, par l'équation :

$$[OBT]_{organisme} = CF_{organisme} \cdot [HTO]_{eau}$$

$[OBT]_{organisme}$	Activité d'OBT dans l'organisme (Bq.kg ⁻¹)
$CF_{organisme}$	Ratio $[OBT]_{organisme} / [HTO]_{eau}$ (L.kg ⁻¹ ; 0,6 plantes aquatiques ; 0,45 animaux aquatiques ; Kirchmann <i>et al.</i> , 1979).
$[HTO]_{eau}$	Activité volumique de l'eau tritiée HTO du milieu aquatique ambiant (Bq.L ⁻¹)

La deuxième approche 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 suivante (IRSN, 2009) :

$$[OBT]_{poisson} = (1 - H_{poisson}) \cdot WEQ_{poisson} \cdot PF_{poisson} \cdot [HTO]_{eau}$$

$[OBT]_{poisson}$	Activité d'OBT (fraction non échangeable) dans le poisson frais (Bq.kg ⁻¹ frais) ;
$H_{poisson}$	Teneur en eau du poisson (0,78 L.kg ⁻¹)
$WEQ_{poisson}$	Facteur équivalent en eau du poisson (kg d'eau produit par kg de matière sèche brûlée, moyenne géométrique 0,65)
$PF_{poisson}$	Facteur de partition relatif au poisson (s.d., moyenne géométrique 0,66)

Remarque

Des modélisations dynamiques du transfert de tritium sous forme libre et organique sont proposées par différents auteurs. Ces modèles prennent en compte de façon spécifique le transfert aux producteurs primaires (phytoplancton) et aux poissons. Une synthèse de ces modèles est présentée dans un rapport IRSN dédié au tritium (IRSN, 2009).

Paramètres radiotoxicologiques

Milieu terrestre

Coefficients de conversion de dose (DCC), exprimés en poids frais

Espèce modèle	DCC interne (μGy.h ⁻¹ par Bq.kg ⁻¹)	DCC externe (μGy.h ⁻¹ par Bq.kg ⁻¹ sol)
Lombric	3,07 x 10 ⁻⁶	5,71 x 10 ⁻¹⁰
Escargot	3,07 x 10 ⁻⁶	5,71 x 10 ⁻¹⁰
Mésange	3,07 x 10 ⁻⁶	nd*
Lapin	3,07 x 10 ⁻⁶	4,88 x 10 ⁻¹²
Fétuque	4,11 x 10 ⁻⁴	4,88 x 10 ⁻¹²

*nd : DCC non déterminable en raison de la distance.

Eaux douces

Coefficients de conversion de dose (DCC), exprimés en poids frais

Espèce modèle	DCC interne ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)	DCC externe	
		Sédiment ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Eau ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)
Algue	$2,16 \times 10^{-6}$	nd*	$9,92 \times 10^{-7}$
Daphnie	$3,06 \times 10^{-6}$	nd	$3,61 \times 10^{-9}$
Chironome	$3,05 \times 10^{-6}$	$5,13 \times 10^{-9}$	nd
Gardon	$3,07 \times 10^{-6}$	nd	$9,13 \times 10^{-11}$
Carpe commune	$3,07 \times 10^{-6}$	$1,39 \times 10^{-15}$	$4,03 \times 10^{-11}$
Myriophylle	$3,29 \times 10^{-6}$	$1,19 \times 10^{-11}$	$5,21 \times 10^{-12}$

nd* : DCC non déterminable en raison de la distance ou de la protection apportée par les sédiments.

Eaux marines

Coefficients de conversion de dose (DCC), exprimés en poids frais

Espèce modèle	DCC interne ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)	DCC externe	
		Sédiment ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Eau ($\mu\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$)
Phytoplancton	$3,10 \times 10^{-6}$	nd*	$1,38 \times 10^{-7}$
<i>Fucus</i> (touffe)	$3,07 \times 10^{-6}$	$2,35 \times 10^{-16}$	$2,78 \times 10^{-11}$
Zooplancton	$3,07 \times 10^{-6}$	nd	$1,30 \times 10^{-9}$
Homard	$3,07 \times 10^{-6}$	$5,92 \times 10^{-15}$	$6,71 \times 10^{-11}$
Plie	$3,07 \times 10^{-6}$	$4,58 \times 10^{-15}$	$6,00 \times 10^{-11}$
Maquereau	$3,07 \times 10^{-6}$	nd	$5,13 \times 10^{-11}$

nd* : DCC non déterminable en raison de la distance ou de la protection apportée par les sédiments.

Bibliographie succincte

- AFNOR (2000a). Mesure de la radioactivité dans l'environnement. - Partie 1 : Mesurage de l'activité des émetteurs bêta dans les eaux par scintillation liquide cas particulier du tritium. (indice de classement : M60-802-1). Norme NF M60-802-1, 15 p.
- AFNOR (2000b). Mesure de la radioactivité dans l'environnement. - Partie 3 : Mesurage de l'activité des émetteurs bêta dans les eaux par scintillation liquide cas particulier de la présence simultanée du tritium et du carbone 14 (indice de classement : M60-802-3). Norme NF M60-802-3, 17 p.
- IAEA (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports, Series n°472, IAEA, Vienna.
- Balesdent J, Recous S (1997). Les temps de residence du carbone et le potentiel de stockage de carbone dans quelques sols cultivés français. *Can J Soil Sci*, **77** : 187-193.
- Beaugelin-Seiller K, Jasserand F, Garnier-Laplace J, Gariel JC (2006). Modelling the radiological dose in non-human species : principles, computerization and application. *Health Phys*, **90** : 485-493.
- Belot Y, Roy M et Metivier H (1996). *Le tritium de l'environnement à l'homme*. Éditions de Physique, Paris.
- Blaylock BG, Hoffman FO et Frank ML (1986). Tritium in the aquatic environment. *Radiat. Prot. Dosim.* **16**(1-2) : 65-71.
- Bolsunovsky, A.Y. et Bondareva, L.G. (2003). Tritium in surface waters of the Yenisei River basin. *J Environ Radioactiv*, **66**(3) : 285-294.
- Bonotto S, Gerber GB, Arapis G et Kirchmann R (1982). Modelisation of tritium transfer into the organic compartments of algae. *Belg Ann Belg Ver*, **7**(3-4) : 283-292.
- Choi YH, Kim SB, Lim KM, Park HK, Lee WY (2000). Incorporation into organically bound tritium and the underground distribution of HTO applied to a simulated rice field. *J Environ Radioactiv*, **47** : 279-290.
- Choi YH, Lim KM, Lee WY, 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. *J Environ Radioactiv*, **58** : 67-85.
- Choi YH, Kang HS, Jun I, Keum DK, Lee H, Kim SB, Lee CW (2007). Fate of HTO following its acute soil deposition at different growth stages of Chinese cabbage. *J Environ Radioactiv*, **97** : 20-29
- Commission Européenne (2009). Nucleonica...web driven nuclear science. (application accessible sur Internet, <http://www.nucleonica.net/Application/CommunityPortal.aspx>, page consultée le 23 novembre 2009).
- Cossonet C, Gurrarian (2009). Projet de métrologie tritium par hélium 3. IRSN/DEI, rapport STEME/2009-016.
- Diabaté S et Strack S (1993). Organically Bound Tritium. *Health Physics*, **65**(6) : 698-712.
- Fiévet B. et Plet D. (2003) Estimating biological half-lives of radionuclides in marine compartments from environmental time-series measurements. *J Environ Radioactiv* **65** : 91-107.
- Fiévet B., Voiseux C., Rozet M., Masson M., Bailly du Bois P. (2006). Transfer of radiocarbon liquid releases from the AREVA La Hague spent fuel reprocessing plant in the English Channel. *J Environ Radioactiv* **90** : 173-196.
- Galeriu D., A. Melintescu, N.A. Beresford, N.M.J. Crout, R. Peterson, H. Takeda (2007). Modelling ³H and ¹⁴C transfer to farm animals and their products under steady state conditions, *J. Environ. Radioactiv.* **98** : 205-217.
- Guétat P., Douche C. Hubinois JC (2008). Le tritium et l'environnement : sources, mesures et transferts. *Radioprotection* **43** : 547-569.
- Harrison FL et Korranda JJ (1971). Tritiation of Aquatic Animals in an Experimental Freshwater Pool. Proceedings of Third National Symposium on Radioecology, Oak Ridge, Tennessee, May 1971.
- Higashino M., Gantzer C.J., Stefan H.G. (2004). Unsteady diffusional mass transfer at the sediment/water interface: theory and significance for SOD measurement, *Water Research* **38** (1): 1-12.
- IRSN (2009). Le tritium dans l'environnement : synthèse critique des connaissances et perspectives de recherches. Rapport IRSN/DEI, 105 p.
- IRSN (2010). Le tritium dans l'environnement. Point de vue de l'IRSN sur les questions clés et sur les pistes de recherche et développement. IRSN, rapport DEI/2010-01, 23 p.
- ISO - Organisation internationale de normalisation (2009). « Water quality – Determination of tritium activity concentration – liquid scintillation counting method ». Norme ISO/DIS 9698, en cours de validation.
- Jean-Baptiste P, Fourré E, Dapoigny A, Baumier D, Baglan N, Alanic G (2010) ³He mass spectrometry for very low-level measurement of organic tritium in environmental sample. *J Environ Radioactiv* **101** : 185-190.

- 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 Phys*, **90** : 42-55.
- Koranda JJ et Martin JR (1972). Movement of tritium in ecological systems. *Nucl Sci Abstr*, **26**(5) : 9485.
- Lebaron-Jacobs L, Garnier-Laplace J, Lopez B, Adam-Guillermin C, Dublineau I, Roussel-Debet S, Antonelli C, Fievet B, Bailly du Bois P, Masson M (2009). « Tritium », in Chapitre 30, Toxicologie nucléaire environnementale et humaine. Ménager M.T., Garnier-Laplace J., Goyffon M. (Coord). Editions Tex&Doc – Lavoisier., 575-602.
- 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). ECORAD 2004, Aix en Provence 6-10 septembre 2004. *Radioprotection*, **40**(1) : S589-S594
- McCubbin D., Leonard K.S., Bailey T.A., Williams J., Tossell P., (2001). Incorporation of Organic Tritium (^3H) by Marine Organisms and Sediment in the Severn Estuary/Bristol Channel (UK). *Mar Pollut Bull* **42** : 852-863.
- Melintescu A, Galeriu D (2005). A versatile model for tritium transfer from atmosphere to plant and soil. *Radioprotection*, **40** : S437-42.
- Moiseenko VV, Waker AJ, Hamm RN, Prestwich (2001). Calculation of Radiation-Induced Damage From Photons and Tritium Beta Particles Part II. Tritium RBE and damage complexity, *Radiat. Environ. Biophys* **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. *J Radioanal Nucl Ch*, **242** : 173-175.
- Mook, W.G. (2000). Environmental Isotopes in the hydrological cycle, Principles and applications. Technical Documents in Hydrology, **39**(1), UNESCO, Paris.
- Murphy CE, Jr, (1984) The relationship between tritiated water activities in air, vegetation and soil under steady-state conditions, *Health Phys* **47** : 635-639.
- Myamoto K et Kimura K (1995). A transfer model of tritium in a local hydrosphere. *Japan Fusion Technol*, **28**(3) : 910-917.
- Noguchi H, Yokoyama S (2003). Vertical profile of tritium concentration in air during a chronic atmospheric HT release. *Health Phys*, **84** : 344-353.
- Pally M, Barre A et Foulquier L (1993). Tritium associé à la matière organique de sédiments, végétaux et poissons des principaux cours d'eau français. *Verh Int Ver Limnol*, **25** : 285-289.
- 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.
- Rodgers D (1986). Tritium dynamics in juvenile rainbow trout, *Salmo gairdneri*. *Health Phys*, **50** : 89-98.
- Schulz, HD, Zabel, M (2000). Marine geochemistry. Springer Verlag Berlin Heidelberg New York, 455 pp.
- Strack S, Kistner G et Emeis CC (1979). Incorporation of tritium into planktonic algae in a continuous culture under dynamic conditions. In: Proceedings of an International symposium *Behaviour of tritium in the environment*, IAEA, Vienna, Austria, 219-230.
- 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, Lutke A et Bonotto S (1983). Selective accumulation of organically bound tritium in the marine unicellular algae *Dunaliella bioculata* and *Acetabularia mediterranea*. *Int J Appl Radiat Isot*, **34**(5) : 865-869.
- Straume T et Carsten A (1993). Tritium radiobiology and relative biological effectiveness. *Health Phys* **65** : 657-672.
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) (2000). Sources and effects of ionizing radiation. Report Vol. I: sources. United Nations publications, New York.
- Wierczinski B, Müllen G, Türler A (2005). Tritium enrichment in the hydration sphere of humic substances. *Fusion Sci Technol*, **48** : 783-786.
- 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).
- Yokoyama S., Noguchi H., Ichimasa Y., Ichimasa M. (2004). Re-emission of heavy water vapour from soil to the atmosphere. *J Environ Radioactiv*, **71** : 201-213