

Le tritium dans l'environnement

*Point de vue de l'IRSN sur les questions clés
et sur les pistes de recherche et de
développement*

Rapport DEI 2010-01

5 février 2010

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION	2
2. A-T-ON UNE BONNE CONNAISSANCE DU DEVENIR DU TRITIUM REJETÉ PAR LES ACTIVITÉS NUCLÉAIRES ?.....	3
2.1 LE TRITIUM : UN ISOTOPE RADIOACTIF DE L’HYDROGÈNE, CONSTITUANT DE L’EAU ET DE LA MATIÈRE ORGANIQUE	3
2.2 LA MESURE DU TRITIUM DANS LES REJETS ET DANS L’ENVIRONNEMENT	4
2.2.1 Les techniques de prélèvement et de mesure	4
2.2.2 Expression des résultats de mesure du tritium.....	6
2.2.3 Conclusions concernant les mesures de tritium.....	6
2.3 L’OBSERVATION DU DEVENIR DU TRITIUM DANS L’ENVIRONNEMENT	7
3. EXISTE-T-IL UN RISQUE DE BIOACCUMULATION DE TRITIUM AU SEIN DES ÉCOSYSTÈMES ?	10
3.1 NOTIONS DE BIOACCUMULATION, DE BIOAMPLIFICATION ET DE RÉMANENCE	10
3.2 INTERPRÉTATION DES ACTIVITÉS DE TRITIUM OBSERVÉES DANS L’ENVIRONNEMENT	12
3.2.1 Comportement du tritium dans l’atmosphère.....	12
3.2.2 Comportement du tritium dans les sols	12
3.2.3 Comportement du tritium dans les végétaux terrestres.....	13
3.2.4 Comportement du tritium dans les milieux aquatiques continentaux et marins.....	15
3.3 CONCLUSIONS SUR LA BIOACCUMULATION DU TRITIUM.....	16
4. LA CONNAISSANCE DES RISQUES DUS AU TRITIUM INCORPORÉ PAR LES ORGANISMES VIVANTS EST-ELLE SUFFISANTE ?.....	18
4.1 PRISE EN COMPTE DE LA SPÉCIATION DU TRITIUM POUR L’ÉVALUATION DES DOSES REÇUES PAR LES ORGANISMES VIVANTS	18
4.2 CONNAISSANCES SUR LES EFFETS NOCIFS DU TRITIUM	19
4.3 CONNAISSANCE DE L’EFFICACITÉ BIOLOGIQUE RELATIVE (EBR) DU TRITIUM	20
5. CONCLUSIONS.....	21

1. INTRODUCTION

Le présent rapport développe le point de vue de l'IRSN sur les questions clés relatives au comportement du tritium dans l'environnement et aux risques associés, en s'appuyant sur la synthèse des connaissances développée dans le rapport IRSN/DEI-2009-05 ; cette synthèse a elle-même été établie à partir de l'examen des résultats d'études et de recherches menées depuis plusieurs décennies sur ce radionucléide, ainsi que des données issues des observations environnementales sur le territoire français. Cette contribution s'inscrit dans le cadre d'un débat actif en France autour de ces questions : séminaire organisé par l'Association nationale des commissions locales d'information (ANCLI) en novembre 2008, mise en place par l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) d'un groupe de réflexion sur l'impact du tritium (janvier 2008 - février 2010), journées de la Société française de radioprotection (SFRP) consacrées au tritium (septembre 2009). Ce débat est lui-même suscité par deux éléments de contexte distincts :

- au plan international, des questionnements existent sur les risques sur la santé de l'homme exposé au tritium présent dans l'environnement, à l'occasion de débats scientifiques ou sociétaux (CERRIE, 2004 ; AGIR, 2007 ; Greenpeace, 2007 ; séminaire scientifique organisé par la Commission européenne à Luxembourg, 2007 ; atelier organisé par la Commission canadienne de sûreté nucléaire, 2008) ;
- en France, le tritium est un des radionucléides prépondérants en termes d'activité rejetée par les installations nucléaires, dans les effluents liquides et gazeux. Les changements de mode de gestion du combustible des réacteurs actuels, la mise en exploitation de nouveaux réacteurs (notamment l'EPR) ainsi que celle, à moyen terme, de l'installation de fusion ITER devraient conduire, dans les années qui viennent, à une augmentation des rejets de tritium dans l'environnement.

A partir de l'examen des résultats d'études et de recherches menées sur le tritium, l'IRSN a identifié trois questions clés relatives au tritium dans l'environnement et à ses conséquences sur les écosystèmes :

- a-t-on une connaissance suffisante sur le devenir du tritium rejeté par les activités nucléaires ?
- existe-t-il un risque de bioaccumulation du tritium par les organismes vivants au sein des écosystèmes ?
- existe-t-il une connaissance appropriée des risques dus au tritium incorporé par des organismes vivants ?

Le présent rapport donne des éléments d'éclairage sur ces questions et propose des pistes de recherches et de développement de techniques ou de méthodes spécifiques, qui permettraient d'apporter des connaissances utiles du point de vue de la radioprotection. Le rapport IRSN/DEI-2009-05 fournit une liste très complète de références bibliographiques, non reprises ici.

2. A-T-ON UNE BONNE CONNAISSANCE DU DEVENIR DU TRITIUM REJETÉ PAR LES ACTIVITÉS NUCLÉAIRES ?

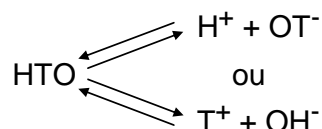
2.1 Le tritium : un isotope radioactif de l'hydrogène, constituant de l'eau et de la matière organique

Le tritium (symbolisé par ^3H ou T) est un isotope radioactif de l'hydrogène et, de ce fait, a un comportement analogue à celui de cet élément :

- l'élément hydrogène est un constituant des molécules d'eau (H_2O) et, à ce titre, le tritium (T) peut se substituer à un atome d'hydrogène stable (H) en formant une molécule d'eau tritiée (HTO) ; il en va de même pour le gaz dihydrogène (H_2), d'abondance plus faible que l'eau dans l'atmosphère, pouvant devenir tritié (HT) ;
- l'élément hydrogène est un constituant majeur (avec le carbone, l'azote et l'oxygène) des molécules organiques constituant la matière vivante et ses produits de dégradation.

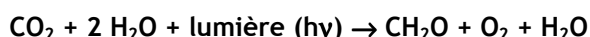
D'une manière générale, la composition chimique des différents constituants minéraux ou organiques intégrant l'élément hydrogène est bien connue, ainsi que les propriétés physico-chimiques de ces substances, à la fois dans le cycle de l'eau et dans les grandes fonctions métaboliques des organismes vivants (photosynthèses, métabolisme énergétique, anabolisme/catabolisme...). Le devenir du tritium rejeté dans l'environnement est régi par les propriétés générales de l'élément hydrogène au sein de ces différents processus. Il est toutefois à noter qu'en raison de la différence de masse atomique entre le tritium (3) et l'hydrogène stable (1), des phénomènes de fractionnement isotopique peuvent survenir lors des changements de phase de l'eau (évaporation, condensation, solidification, fusion) qui entraînent un faible enrichissement en tritium par rapport à l'hydrogène stable dans la phase la plus condensée (eau liquide).

Les molécules d'eau ont une propriété de dissociation partielle (ou ionisation) en ions H^+ (hydratés avec une molécule d'eau pour devenir H_3O^+) et OH^- ; dans le cas de l'eau tritiée, les équilibres suivants s'établissent :



L'état d'équilibre dépend des réactions acido-basiques avec les autres espèces chimiques en solution, déterminant le pH de l'eau, pouvant conduire l'élément hydrogène (H^+ ou T^+) ou l'ion hydroxyle (OH^- ou OT^-) à se lier à des molécules basiques ou acides, dont certaines peuvent être des molécules organiques. Il résulte de cette propriété fondamentale une capacité d'échange rapide du tritium de l'eau tritiée avec l'ensemble des molécules d'eau et des substances ayant des fonctions acido-basiques, présentes dans le milieu récepteur. Le tritium de l'eau tritiée absorbée par les animaux et les plantes peut ainsi se retrouver rapidement dans les milieux extracellulaire et intracellulaire, associé au cytosol (solution cellulaire) ou lié à des molécules organiques.

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



Lorsque la photosynthèse se fait en présence d'eau tritiée, du tritium peut être intégré aux glucides synthétisés et se retrouver ainsi lié à la matière organique. Le métabolisme du végétal entraîne la synthèse d'autres composants organiques (glucides, lipides, protéines, acides aminés...) qui peuvent, à leur tour, contenir du tritium.

Pour l'ensemble des animaux, qui sont des organismes hétérotrophes, la biosynthèse des molécules organiques nécessaires à la constitution des cellules et des tissus ainsi qu'au métabolisme est uniquement réalisée à partir de molécules organiques venant de l'alimentation. Si l'alimentation

comporte des molécules organiques tritiées, le tritium ainsi incorporé peut se retrouver plus ou moins durablement fixé à des constituants biologiques de l'organisme vivant⁽¹⁾. Il convient de souligner qu'en raison de la différence de masse atomique entre l'hydrogène stable (1) et le tritium (3), ce dernier a tendance à être défavorisé lors des réactions enzymatiques, ce qui conduit ainsi à un certain fractionnement isotopique en faveur de l'hydrogène stable lié à la matière organique.

En conclusion, l'IRSN estime que les processus physico-chimiques et biologiques déterminant le devenir du tritium, en tant qu'isotope radioactif de l'hydrogène, sont bien connus dans leur ensemble, et n'a identifié aucun phénomène susceptible de conduire à concentrer davantage le tritium dans la matière organique que l'hydrogène stable dont il suit le même comportement. La bonne compréhension du devenir du tritium dans l'environnement nécessite de déterminer sa forme chimique (appelée aussi « spéciation »).

Les principales formes de tritium habituellement considérées dans les études environnementales :

- **eau tritiée** : eau contenant du tritium sous forme moléculaire (HTO) ou ionisée (T⁺ ou OT⁻) ; on parle également de « tritium libre » pour l'eau tritiée tissulaire (intra ou extracellulaire) d'un échantillon biologique ;
- **tritium organiquement lié (TOL) ou « organically bound tritium » (OBT)** : tritium lié à des molécules organiques, soit facilement échangeable (TOL-E) comme par exemple le tritium associé à un radical acide, soit non-échangeable (TOL-NE) car fixé par une liaison covalente.

2.2 La mesure du tritium dans les rejets et dans l'environnement

2.2.1 Les techniques de prélèvement et de mesure

La quantification du tritium dans les milieux physiques de l'environnement (atmosphère, hydrosphère) et les rejets d'effluents des installations se fait à l'aide de mesures sur des échantillons d'eau obtenus :

- soit par des prélèvements d'eau (eaux de surface, eaux de mer, eaux souterraines, eaux de pluie) ou par condensation de l'eau évaporée à partir d'un prélèvement d'effluent liquide (technique de la lentille de glace) ;
- soit par la collecte de vapeur d'eau de l'air (ou des effluents gazeux) à l'aide de barboteurs (aspiration d'air à travers un volume d'eau pauvre en tritium), de colonnes desséchantes solides ou de dispositifs de condensation (système PREVAIR mis au point par l'IRSN).

Il est à noter que ces techniques de prélèvement ne permettent généralement de quantifier que le tritium sous forme d'eau tritiée (HTO). Par conséquent :

- dans les effluents gazeux et dans l'air : le tritium présent sous forme de gaz dihydrogène (HT) ou de méthane (CH₃T) n'est pas recueilli lors des prélèvements, sauf si le dispositif comprend une étape d'oxydation catalytique de l'hydrogène de l'air ; ces formes chimiques du tritium gazeux ne sont donc pas quantifiées en routine, mais il est admis qu'elles sont minoritaires dans les rejets, par rapport à la forme HTO (moins de 5 % des rejets gazeux de tritium pour les centrales nucléaires) ;
- dans les effluents liquides et dans les milieux aquatiques continentaux ou marins : le tritium lié à la matière organique en suspension ou en solution dans l'eau n'est pas spécifiquement quantifié. Or, comme on le verra au paragraphe 3.2, il est important de connaître la part du tritium éventuellement lié à des molécules organiques dans l'eau, notamment pour interpréter d'éventuelles valeurs de facteurs de concentration montrant un déséquilibre entre certains organismes aquatiques et le milieu ambiant.

Pour les échantillons biologiques (végétaux, animaux) ou solides (sédiments, sols), un traitement préalable est généralement nécessaire d'une part pour mettre le tritium sous une forme mesurable

¹ Le métabolisme énergétique (cycle de Krebs) des cellules conduit également à intégrer dans des molécules organiques de l'hydrogène venant de molécules d'eau

(eau tritiée), d'autre part pour quantifier séparément le tritium libre (eau tritiée contenue dans les échantillons) et le tritium lié à la matière organique (matière vivante, humus ou matière organique sédimentée). L'extraction du tritium libre (HTO) se fait habituellement par séchage, préférentiellement par lyophilisation, suivi de la collecte par condensation de l'eau évaporée. La fraction sèche résultant de ce traitement contient le tritium lié à la matière organique (TOL ou OBT) ; selon la technique analytique utilisée (notamment pour l'analyse par scintillation liquide), le tritium organiquement lié peut être transformé en eau tritiée (HTO) par combustion de la matière organique, cette eau tritiée étant ensuite récupérée pour analyse. Pour des études plus fines sur l'état du tritium dans la matière organique, une étape préalable à la combustion (lessivage de l'échantillon dans de l'eau non tritiée) permet de séparer le tritium organiquement lié échangeable (TOL-E) qui migre dans l'eau de lessivage et le tritium organiquement lié non échangeable (TOL-NE) qui reste dans la fraction solide de l'échantillon.

Certains laboratoires réalisent également des mesures du tritium total contenu dans l'échantillon (HTO+OBT) en effectuant une oxydation chimique complète de celui-ci (à l'aide d'acide chromique) puis en récoltant l'eau de distillation de l'échantillon oxydé.

La technique de mesure du tritium dans l'eau la plus couramment utilisée est la scintillation liquide qui présente l'avantage d'être simple et rapide à mettre en œuvre, et peu coûteuse. La limite de détection est voisine de 6 Bq/L pour les mesures faites avec un liquide scintillant standard et peut être environ 5 fois plus petite pour les mesures faites avec un liquide scintillant « bas bruit de fond ». ***Cette limite de détection est largement suffisante pour des mesures réalisées dans le cadre d'un contrôle réglementaire du tritium autour des installations nucléaires, l'objectif principal étant de détecter rapidement une éventuelle élévation anormale de l'activité du tritium dans l'environnement.***

Toutefois, cette limite de détection est trop élevée dès lors que l'on veut s'intéresser au devenir et au comportement du tritium dans les différentes composantes physiques et biologiques de l'environnement ; en effet, l'activité du tritium libre et celle du tritium organiquement lié (exprimées en Bq/L d'eau de distillation ou de combustion) sont actuellement souvent voisines de 1 Bq/L, voire inférieures, en raison d'une décroissance régulière de la concentration du tritium observée dans l'environnement au cours des quinze dernières années. Dans ces conditions, pour poursuivre l'observation des tendances d'évolution du tritium dans les différents milieux ou pour déterminer avec suffisamment de précision les facteurs de concentration du tritium dans les organismes vivants ou dans les sédiments, il est nécessaire de recourir à des techniques d'analyse plus fines. C'est ce que permet en particulier la technique de mesure de l'hélium-3 (^3He) par spectrométrie de masse. Le principe de cette technique consiste, dans un premier temps, à laisser décroître le tritium de l'échantillon à analyser dans un récipient étanche, afin d'accumuler une quantité suffisante d'hélium-3 (descendant stable du tritium), puis de mesurer cette quantité d'hélium à l'aide d'un spectromètre de masse. La limite de détection est d'autant plus basse que l'échantillon aura été laissé en décroissance pendant une longue durée ; par exemple, la décroissance du tritium pendant 6 mois dans un échantillon de 0,5 L d'eau permet de mesurer le tritium avec une limite de détection de 0,003 Bq/L. ***Cette technique de mesure doit être réservée de préférence aux études radioécologiques sur le comportement du tritium car, en raison des délais importants d'obtention des résultats, elle ne convient pas pour une surveillance de routine de l'environnement d'une installation rejetant du tritium.***

La qualité des techniques de mesure ne suffit pas à garantir la pertinence des résultats obtenus. En effet, une partie du tritium des échantillons (tritium libre, essentiellement) pouvant avoir une forte propension à s'échanger avec la vapeur d'eau de l'air ambiant, le manque de précaution au cours des étapes de collecte, de conditionnement des échantillons et de préparation préalable de l'échantillon avant mesure, peut entraîner des échanges incontrôlés de tritium avec le reste de l'environnement. Il peut en résulter soit une perte partielle de tritium si la vapeur d'eau ambiante est moins tritiée, soit au contraire un accroissement de la concentration du tritium lorsque l'activité initiale du tritium dans l'échantillon est très faible (exemple : eau profonde de l'Atlantique, où l'activité du tritium est de l'ordre de la dizaine de mBq/L). Dans un tel cas, le résultat de mesure obtenu pour l'échantillon peut être non représentatif de l'état réel du milieu échantillonné.

2.2.2 Expression des résultats de mesure du tritium

On constate une disparité dans l'expression des résultats de mesure du tritium présentés dans les nombreuses publications scientifiques et techniques traitant du tritium dans l'environnement. Cette situation peut nuire à l'interprétation des résultats et à la comparaison des études.

Compte tenu des propriétés du tritium décrites au paragraphe 2.1, il est recommandé de préciser la forme chimique du tritium mesurée lorsqu'on s'intéresse aux phénomènes de transfert et à l'évaluation de l'impact radiologique. Pour les échantillons biologiques, les sols et les sédiments, il convient au moins de distinguer le tritium libre et le tritium organiquement lié ; il est également souhaitable de connaître la fraction non échangeable du tritium organiquement lié, dont la rémanence peut être significativement plus élevée (cf. § 3). En pratique, selon les laboratoires ou les auteurs de publications, l'« OBT » peut signifier soit la totalité du tritium organiquement lié, soit uniquement sa fraction non échangeable, ce qui rend parfois difficiles les comparaisons des résultats des différents auteurs.

Pour les calculs de dose, il est nécessaire d'utiliser des résultats de mesure exprimés soit en Bq/kg_(frais) (ou Bq/L pour les liquides) pour les denrées consommables par l'homme, soit en Bq/m³ pour l'air respiré. En revanche, pour suivre et étudier l'impact environnemental du tritium, il est préférable d'exprimer tous les résultats en Bq/L (Bq/L d'eau de distillation pour la fraction HTO et Bq/L d'eau de combustion pour la fraction OBT) quelle que soit la forme chimique initiale du tritium, afin de faire abstraction des différences d'hydratation et de teneur en matière organique des différentes matrices étudiées. L'expression des résultats sous cette forme est également cohérente avec les protocoles analytiques couramment utilisés, qui conduisent à transformer le tritium de l'échantillon en eau tritiée.

Quelle que soit la forme chimique initiale du tritium, l'activité volumique de l'eau tritiée obtenue par combustion de l'échantillon (pyrolyse et oxydation complète des gaz de combustion) est représentative du rapport entre le nombre d'atomes de tritium et le nombre d'atomes d'hydrogène de l'échantillon⁽²⁾.

L'étude de l'activité de l'eau tritiée des échantillons de l'environnement prélevés à plus ou moins grande distance des sources d'émission permet de suivre et de comparer les processus de dilution du tritium au sein de l'hydrogène stable présent dans les différents constituants de l'environnement, principalement l'eau et la matière organique.

Il est également possible d'évaluer d'éventuels déséquilibres de concentration du tritium au sein d'un organisme vivant (en comparant l'activité du tritium organiquement lié à celle du tritium libre) ou entre un organisme vivant et son milieu ambiant (vapeur d'eau de l'air, eau du sol ou milieu aquatique). **On emploie alors la notion de « facteur de concentration », celui-ci étant défini comme le rapport des activités de l'eau tritiée mesurées dans chacun des deux compartiments étudiés ; il s'agit d'un paramètre macroscopique et empirique, dont l'interprétation nécessite de tenir compte des processus physiques et biologiques contrôlant les transferts de tritium** (voir aussi le § 3).

2.2.3 Conclusions concernant les mesures de tritium

L'IRSN souligne que le choix d'une technique analytique pour le tritium doit être adapté à l'objectif principal poursuivi :

- la technique de mesure par scintillation liquide est suffisante pour la surveillance de routine visant à détecter rapidement toute élévation anormale de l'activité du tritium dans l'environnement et, généralement, on peut se satisfaire d'une mesure du tritium total ;
- par contre, pour suivre et comprendre le devenir du tritium dans l'environnement, il est nécessaire de recourir à des techniques plus fines (mesure par spectrométrie de masse de

² Par exemple, si l'hydrogène stable (H) et le tritium (T) sont constitutifs de molécules organiques ayant une formule de type CH_{n-x}T_x, l'oxydation complète de ces molécules entraîne la production d'eau tritiée contenant x HTO et (½n-x) H₂O, qu'on peut également exprimer sous la forme globale H_{n-x}T_xO ; dans tous les cas, le rapport (nombre d'atomes de tritium)/(nombre d'atomes de l'élément hydrogène) est identique et vaut x/n.

l'hélium-3), en distinguant systématiquement le tritium libre (HTO) et le tritium organiquement lié (OBT) dans les échantillons biologiques, dans les sols ou dans les sédiments.

Dans le cadre de l'évolution de sa stratégie de surveillance de la radioactivité de l'environnement, l'IRSN prévoit de développer davantage ce deuxième objectif, afin de renforcer la complémentarité de sa surveillance du tritium par rapport à celle assurée par les exploitants nucléaires dans le cadre des prescriptions réglementaires qui s'imposent à eux.

L'IRSN rappelle que la maîtrise de la qualité métrologique des mesures de tritium en laboratoire n'est pas une condition suffisante à l'obtention de résultats pertinents et qu'***une vigilance particulière doit être assurée dès l'étape de prélèvement des échantillons dans l'environnement, afin de prévenir les échanges incontrôlés de tritium avec le milieu ambiant avant analyse et d'éviter de se méprendre dans l'interprétation des résultats.***

Enfin, il est important d'harmoniser l'expression des résultats de mesure du tritium en fonction du cadre d'emploi :

- systématiquement en Bq/L, que ce soit pour HTO ou OBT, quel que soit l'objectif de la mesure et en particulier lorsqu'il s'agit d'étudier le devenir du tritium dans l'environnement ou de détecter une élévation éventuelle de l'activité du tritium dans l'environnement ;
- en Bq/kg_{frais}, Bq/L ou Bq/m³ lorsque les résultats sont utilisés pour faire des évaluations de doses dues à l'ingestion de produits tritiés (en distinguant la part liée à la matière organique, s'agissant des aliments) ou à l'inhalation.

2.3 L'observation du devenir du tritium dans l'environnement

Les principales origines du tritium présent dans l'environnement sont :

- la production naturelle, principalement dans l'atmosphère (interactions avec le rayonnement cosmique), représentant chaque année la formation de l'ordre de $7,2 \cdot 10^{16}$ Bq de tritium et conduisant à un inventaire permanent d'environ $1,275 \cdot 10^{18}$ Bq à l'échelle planétaire ;
- la libération de tritium lors des essais aériens d'armes nucléaires effectués entre 1945 et 1980, représentant une quantité de tritium estimée à $186 \cdot 10^{18}$ Bq ;
- les rejets des installations du cycle du combustible nucléaire civiles et militaires en fonctionnement normal et lors des phases de démantèlement, représentant globalement une activité annuelle de $9,83 \cdot 10^{15}$ Bq (année 2008), à 94% dans les effluents liquide (figure 1) ;
- les rejets liés à l'utilisation du tritium dans l'industrie biomédicale, et plus généralement aux activités de recherches (molécules marquées) ;
- l'utilisation ancienne du tritium dans l'horlogerie et la fabrication de peintures luminescentes.

La quantité de tritium présente dans la biosphère a fortement augmenté lors des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère, entre 1945 et 1980. La décroissance radioactive (période de 12,32 ans) a fait disparaître près de 90 % du tritium produit au cours de cette période. Aujourd'hui et pour les années à venir, les sources de tritium les plus importantes sont celles issues des rejets des installations du cycle du combustible nucléaire (réacteurs, usines de traitement de combustibles usés) et, dans le futur, des applications impliquant la fusion nucléaire.

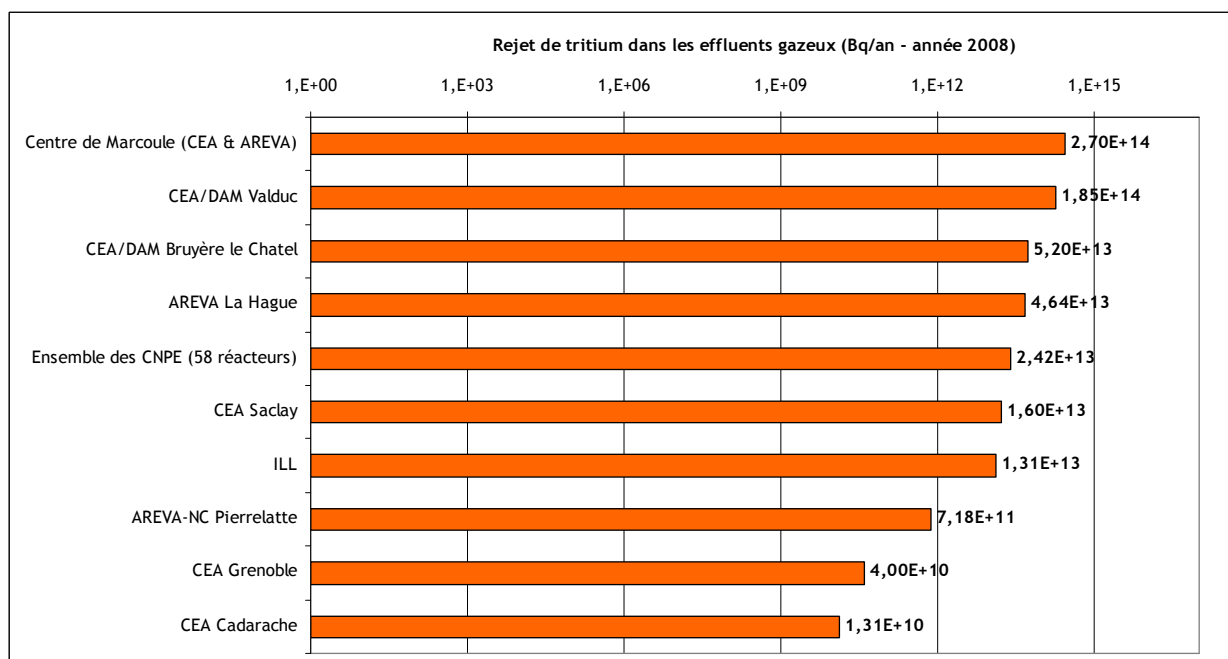
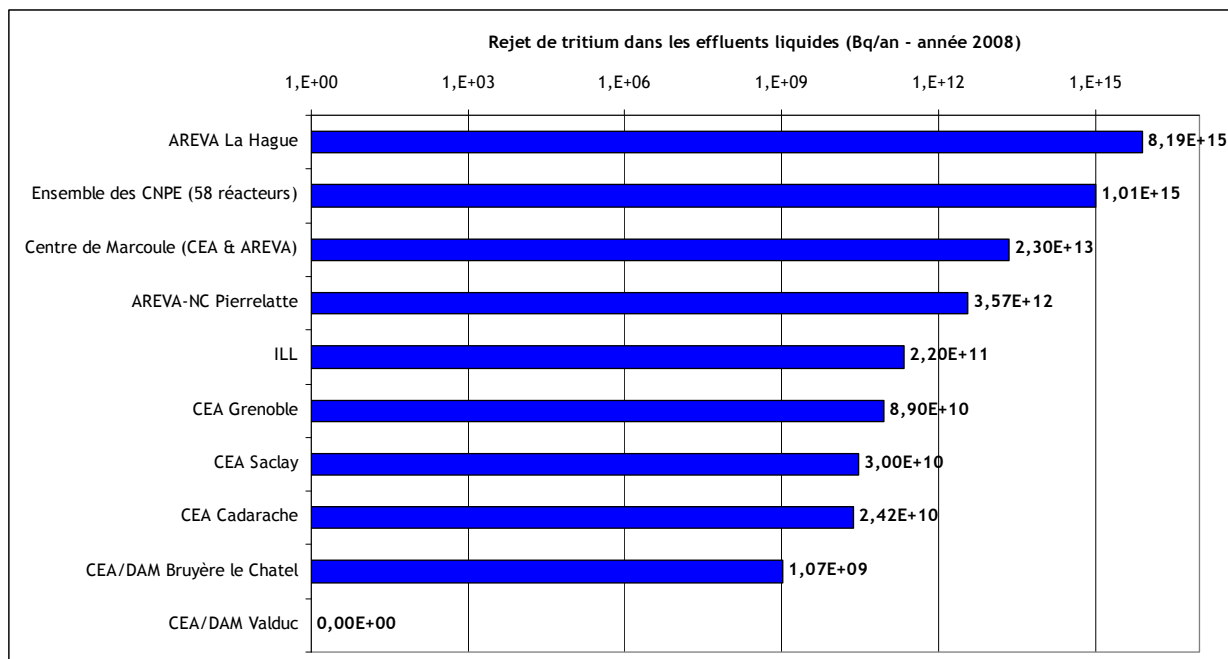


Figure 1 - Rejets annuels de tritium dans les effluents liquides (en haut) et gazeux (en bas) déclarés par les exploitants des principaux sites nucléaires en France (2008).

L'IRSN dispose, sur plusieurs décennies, de nombreux résultats de mesure du tritium dans des échantillons terrestres, aquatiques et marins prélevés soit dans le cadre de sa mission de surveillance de l'environnement, soit dans le cadre d'études radioécologiques réalisées sur le territoire métropolitain français, autour des diverses installations nucléaires (centrales nucléaires en fonctionnement ou en démantèlement, usines de traitement de combustibles usés, centres de stockage...) ou sur des zones hors de toute influence industrielle afin de déterminer les bruits de fond pour les différents radionucléides. L'exploitation de ces résultats permet d'en tirer les principales informations suivantes.

- **Le tritium dans l'air**

Globalement, l'activité volumique du tritium dans l'air a fortement diminué au fil des années, depuis l'arrêt des essais atmosphériques d'armes nucléaires. En 2008, les activités du tritium mesurées dans l'eau de pluie se situent entre 1 et 4 Bq/L, ce qui correspond à environ 0,01 à 0,04 Bq/m³ d'air, en supposant un équilibre entre l'eau de pluie et la vapeur d'eau de l'air ambiant. Des valeurs significativement plus élevées sont observées auprès des sites nucléaires de Valduc (d'un facteur 100 à

500), Marcoule et La Hague. En revanche, un tel marquage de l'air n'est pas visible autour des centrales nucléaires qui rejettent beaucoup moins de tritium dans l'air.

Par ailleurs, il semble que les activités du tritium atmosphérique sous forme de HT et de CH₃T demeurent à des niveaux stables, respectivement de 0,019 et 0,012 Bq/m³, supérieurs au bruit de fond antérieur à 1945. Les activités actuelles de ces formes du tritium suggèrent que leur transformation en HTO est très lente ou qu'un apport significatif de tritium sous forme HT et CH₃T se poursuit encore actuellement.

- **Le tritium dans les écosystèmes terrestres**

L'examen des résultats acquis par l'IRSN au cours des 20 dernières années, principalement pour des échantillons végétaux, montre une gamme de valeurs d'activité volumique allant de moins de 1 Bq/L à près de 50 Bq/L dans les zones hors influence des rejets d'installations nucléaires, et pouvant parfois dépasser une centaine de Bq/L dans des échantillons prélevés sous l'influence des rejets atmosphériques d'installations. D'autres données de la littérature technique indiquent des valeurs de plusieurs milliers de Bq/L pour certains végétaux sous l'influence de rejets. Les gammes de valeurs sont analogues pour le tritium libre et pour le tritium lié à la matière organique.

Ces résultats montrent globalement une tendance à la diminution depuis une quinzaine d'années, souvent selon une période plus courte (environ 6 ans pour le lait) que la période radioactive du tritium (pour plus de détail, voir le paragraphe 3.2.3). Aujourd'hui, la quantification, en milieu continental, des activités de tritium imputables aux installations nucléaires devient délicate car les valeurs à mesurer sont proches du bruit de fond local.

- **Le tritium dans les écosystèmes aquatiques continentaux**

Les résultats de mesures de l'IRSN des 20 dernières années montrent une gamme de valeurs d'activité et une évolution similaires à celles observées en milieu terrestre, pour les échantillons végétaux et animaux. Dans les eaux de surface, les valeurs d'activité du tritium ont varié dans une gamme de 1 à quelques milliers de Bq/L à l'aval des points de rejet d'effluents liquides des installations nucléaires, alors qu'aujourd'hui, cette activité mesurée dépasse rarement 100 Bq/L.

- **Le tritium dans le milieu marin**

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

Les apports industriels, en particulier ceux des usines de traitement de combustibles usés (La Hague en France et Sellafield en Grande-Bretagne), sont actuellement les principales sources de tritium pour les écosystèmes marins. A proximité de l'émissaire de rejet de l'usine de la Hague, qui est la principale source de tritium pour la Manche, la concentration moyenne du tritium mesurée dans l'eau de mer à la côte est d'environ 10 Bq.L⁻¹. Parmi les 14 000 mesures effectuées en mer par l'IRSN, dans le « panache » des rejets de l'usine, la concentration mesurée la plus élevée a été de 3600 Bq.L⁻¹ ; elle correspond à un rejet effectué une heure plus tôt. Les mesures de surveillance de routine ne permettent pas de déceler les contributions des autres installations nucléaires qui rejettent du tritium dans la Manche ; en effet, la mise en évidence de l'influence des rejets de tritium des centrales nucléaires côtières (Flamanville, Paluel, Penly et Gravelines) nécessiterait la mesure d'activités volumiques inférieures à 1 Bq/L, ce qui n'est pas possible avec la technique usuelle de mesure par scintillation (cf. 2.2.1).

L'activité du tritium mesurée dans des organismes marins (mollusques, poissons, crustacés) et des végétaux (algues) prélevés au voisinage de l'usine AREVA de la Hague varie entre environ 5 et 15 Bq/L, aussi bien pour le tritium libre (HTO) que pour le tritium lié à la matière organique (OBT ; voir aussi § 3).

En conclusion, l'IRSN considère que les nombreuses mesures réalisées dans l'environnement, principalement au voisinage des installations nucléaires, apportent une bonne connaissance des gammes de valeurs d'activité du tritium dans les différents milieux et montrent des évolutions globalement à la baisse au cours des 20 dernières années. Aujourd'hui, pour poursuivre l'observation de ces évolutions, il est nécessaire de recourir à des techniques de mesure permettant d'atteindre une limite de détection de l'ordre de 1 Bq/L, voire inférieure. C'est pourquoi l'IRSN est en train de se doter d'un équipement de mesure du tritium par l'hélium-3, répondant à cet objectif.

3. EXISTE-T-IL UN RISQUE DE BIOACCUMULATION DE TRITIUM AU SEIN DES ÉCOSYSTÈMES ?

3.1 Notions de bioaccumulation, de bioamplification et de rémanence

Le paragraphe 2.2 explique qu'il est possible de comparer les concentrations de tritium sous des formes moléculaires différentes (HTO vapeur, HTO liquide, OBT échangeable, OBT non échangeable) en les exprimant en termes d'activité de tritium par litre d'eau (Bq/L).

Compte tenu de la forte mobilité du tritium évoquée précédemment, que ce soit sous forme aqueuse ou dans les processus biologiques, on pourrait s'attendre à observer une mise à l'équilibre rapide des activités du tritium dans les différents compartiments en interface. En fait, ce n'est pas toujours le cas et il est possible d'observer des activités de tritium plus élevées dans des organismes vivants que dans leur milieu ambiant. Dès lors se pose la question de l'existence d'un éventuel phénomène de bioaccumulation, voire de bioamplification.

*D'une manière générale, la **bioaccumulation**, également appelée **bioconcentration**, résulte d'un phénomène d'accumulation progressive d'un contaminant ou d'une substance toxique dans un organisme, à partir de diverses sources, y compris l'atmosphère, l'eau et les aliments. A l'échelle d'un organisme vivant, végétal ou animal, la bioaccumulation conduit à une concentration de la substance incorporée à un niveau plus important que dans les sources d'origine. La bioaccumulation d'une substance dans des structures tissulaires ou cellulaires particulières peut également conduire à des concentrations locales différant entre elles d'un à plusieurs ordres de grandeur.*

Lorsque la concentration de la substance reste constante dans la source d'exposition, le phénomène de bioaccumulation se poursuit tant que la vitesse d'accumulation est plus importante que la vitesse d'élimination de la substance ; une fois que ces vitesses deviennent identiques, un état d'équilibre est atteint et détermine un niveau constant de concentration de la substance dans l'organisme. *C'est le **facteur de bioaccumulation** (ou de **bioconcentration**), rapport entre la concentration dans l'organisme et celle de la source, qui caractérise cet état d'équilibre.* Ainsi, en milieu aquatique, une bioaccumulation peut être mise en évidence lorsque, suite à une exposition durable à un contaminant à faible concentration dans l'eau, on observe une concentration plus importante dans l'organisme. Dans d'autres cas, lorsque la voie d'exposition est l'alimentation, il y a bioaccumulation lorsque la concentration du contaminant dans l'organisme exposé durablement est supérieure à celle mesurée dans son alimentation.

Si le phénomène se reproduit à chaque niveau d'une chaîne trophique, on parle alors de **bioamplification**, conduisant à une concentration de plus en plus élevée de la substance dans les organismes au fur et à mesure qu'on s'élève dans la chaîne trophique. A titre d'exemple, des phénomènes de bioaccumulation et de bioamplification peuvent être observés pour les PCB en milieu aquatique, ces substances ayant tendance à se fixer sur les graisses des organismes (figure 2).

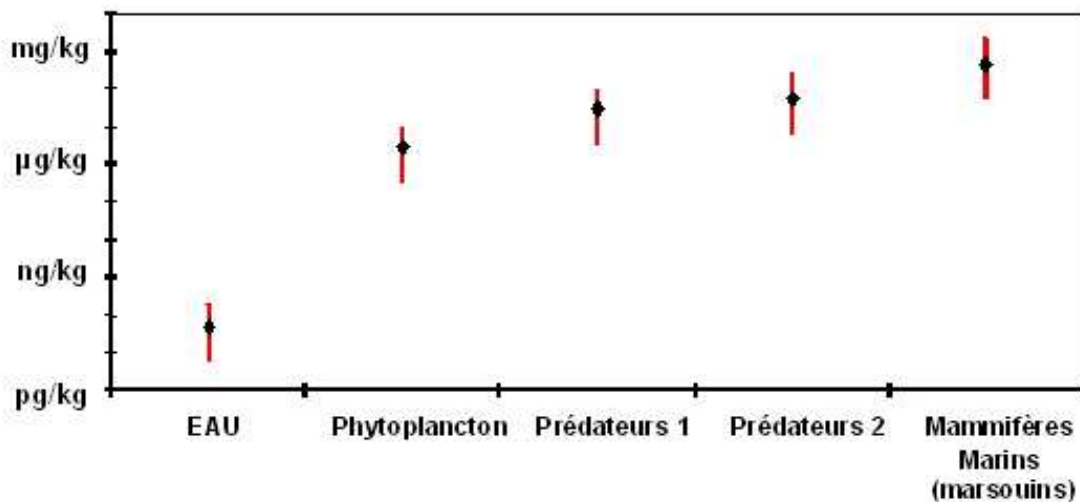


Figure 2 - Illustration de la bioaccumulation et de la bioamplification des PCB dans des organismes marins (IFREMER - site internet). La concentration dans le phytoplancton (premier maillon de la chaîne trophique) est nettement supérieure à celle du milieu ambiant (eau) ; la concentration continue de croître dans les maillons suivants, traduisant une bioamplification via l'alimentation.

Le facteur de bioaccumulation est souvent déterminé par le rapport des concentrations du contaminant dans l'organisme vivant (ou un de ses organes ou tissus) et dans le milieu ambiant (l'eau, le plus souvent). Parfois, il est défini en considérant la concentration du contaminant dans les aliments consommés par l'organisme, plutôt que celle du milieu ambiant ; il est alors plutôt dénommé « facteur de transfert trophique ».

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

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

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

3.2 Interprétation des activités de tritium observées dans l'environnement

3.2.1 Comportement du tritium dans l'atmosphère

Le comportement du tritium dans l'air est bien connu grâce à de nombreuses mesures et sa modélisation ne soulève pas de difficulté spécifique, ce radionucléide étant principalement sous forme gazeuse (majoritairement de la vapeur d'eau ainsi que du gaz dihydrogène et du méthane). **D'une manière générale, le compartiment atmosphérique ne constitue pas un « réservoir » pérenne pour le tritium provenant des différentes sources** car le tritium interagit facilement avec les surfaces au sol : sols proprement dits, végétaux (photosynthèse) et hydrosphère (précipitation et évaporation). La figure 3 montre l'évolution importante de la concentration du tritium observée dans l'eau de pluie de l'hémisphère nord au cours des 50 dernières années, l'eau de pluie étant un bon indicateur de l'état du « stock » de tritium dans l'atmosphère.

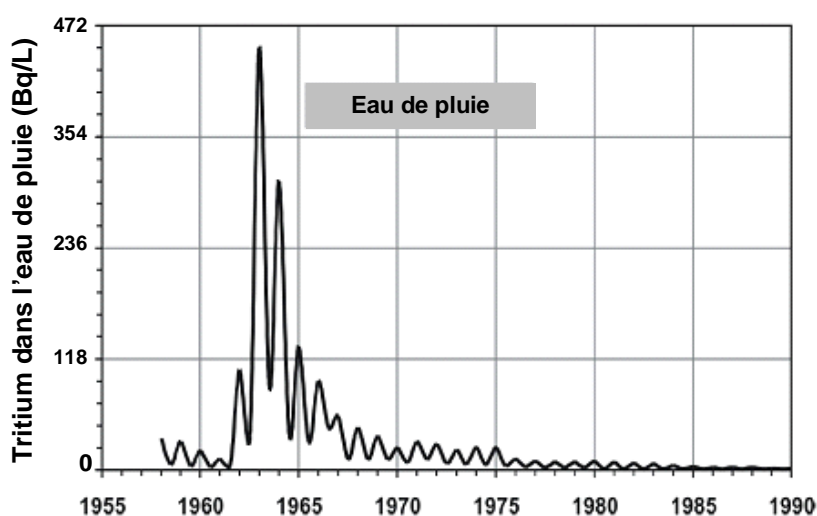


Figure 3 - Courbe lissée représentant l'évolution de la concentration moyenne du tritium dans les eaux de pluies de l'hémisphère Nord (d'après AIEA, Isotope hydrology, 2006).

3.2.2 Comportement du tritium dans les sols

La présence de tritium dans les sols peut résulter de plusieurs processus, dont principalement les dépôts atmosphériques (incluant ceux dus à la pluie) et la formation d'une litière végétale évoluant en humus. Une particularité du tritium est de pouvoir être « réémis » dans l'atmosphère. Il existe plusieurs approches pour la modélisation de ces interactions entre l'atmosphère et le sol :

- l'utilisation du concept de « vitesse de dépôt », selon lequel le flux de tritium vers la surface du sol est égal à la concentration de la vapeur d'eau tritiée (HTO) dans l'air, multipliée par la vitesse de dépôt ; dans ce cas, le processus de « réémission » est modélisé séparément, généralement en supposant qu'une fraction constante (par unité de temps) du tritium présent dans l'eau du sol s'évapore ;
- le calcul du « flux net d'eau tritiée », supposé proportionnel au gradient des concentrations volumiques de vapeur d'eau tritiée entre un niveau de référence, situé généralement à 1 m au-dessus du sol, et la surface du sol ;
- le calcul du « dépôt net de tritium » (bilan des apports et des pertes), modélisé par des coefficients de transfert constants.

La vitesse de dépôt du tritium est très variable selon la forme chimique du tritium, le mode de dépôt ou l'état des surfaces du sol. Par exemple, le tritium sous forme de vapeur d'eau (HTO) a une vitesse de dépôt relativement élevée mais, compte tenu du phénomène inverse d'émission du sol vers l'atmosphère (évaporation), la vitesse apparente de dépôt diminue rapidement par rapport à la vitesse initiale. Le dépôt humide de tritium, quant à lui, dépend directement des caractéristiques des pluies

et doit être considéré séparément en termes de modélisation, sous peine de sous-estimer le dépôt global. Or il apparaît que beaucoup de modèles ne discriminent pas les conditions de formation du dépôt de tritium.

L'incorporation de tritium dans la matière organique des sols et son relâchement ultérieur par « réémission » ne sont pas encore bien connus. Une part significative du tritium lié à la matière organique des sols peut provenir directement du dépôt ou de la dégradation des parties aériennes des végétaux (chute de feuilles et formation d'une litière). **Dans ces conditions, il peut exister un déséquilibre important entre le tritium lié à la matière organique des sols et le tritium libre des sols. Toutefois, l'ensemble des données disponibles indique que le sol n'est pas un compartiment d'accumulation pour le tritium, contrairement à ce qui est observé pour la plupart des autres radionucléides.**

Un phénomène de rémanence, généralement faible, peut parfois être observé lorsque du tritium a été incorporé dans des végétaux grâce à la photosynthèse (voir le paragraphe suivant) et se retrouve ensuite dans les molécules organiques du sol issues de la décomposition des débris végétaux. En effet, diverses études montrent que la dégradation de la litière et la transformation de l'humus ont une cinétique lente et ce n'est qu'au cours du processus de minéralisation progressive de ces matières que le tritium lié à la matière organique peut être libéré, rejoindre le cycle de l'eau et, le cas échéant, être repris par les végétaux, *via* son évaporation à partir de la couche superficielle du sol.

3.2.3 Comportement du tritium dans les végétaux terrestres

Le comportement du tritium dans les végétaux est contrôlé par deux processus majeurs qui sont, d'une part le fonctionnement hydrique du végétal, d'autre part la photosynthèse.

Le premier processus (fonctionnement hydrique) est déterminé principalement par l'absorption racinaire d'eau du sol puis le transport ascendant de celle-ci dans la plante jusqu'aux parties aériennes où s'effectue l'évapotranspiration. Cette dernière, qui fait intervenir des échanges avec l'atmosphère par les stomates, est largement contrôlée par les conditions météorologiques et climatiques (rayonnement, température, humidité de l'air...) et par le moment de la journée.

Un second processus important est la photosynthèse qui conduit à l'incorporation d'atomes d'hydrogène de l'eau (donc de tritium) dans des molécules organiques (voir § 2.1). Par ce processus, la concentration du tritium dans les molécules synthétisées (exprimée en Bq/L d'eau de combustion de la matière organique) est similaire à celle du tritium de l'eau libre du végétal, si on fait abstraction d'une éventuelle et faible séparation isotopique des atomes d'hydrogène en défaveur de l'incorporation de tritium au moment de la photosynthèse.

Le schéma de la figure 4 récapitule les principaux processus d'échange entre un végétal terrestre et son environnement (sol et atmosphère), en distinguant le tritium libre et le tritium organiquement liés.

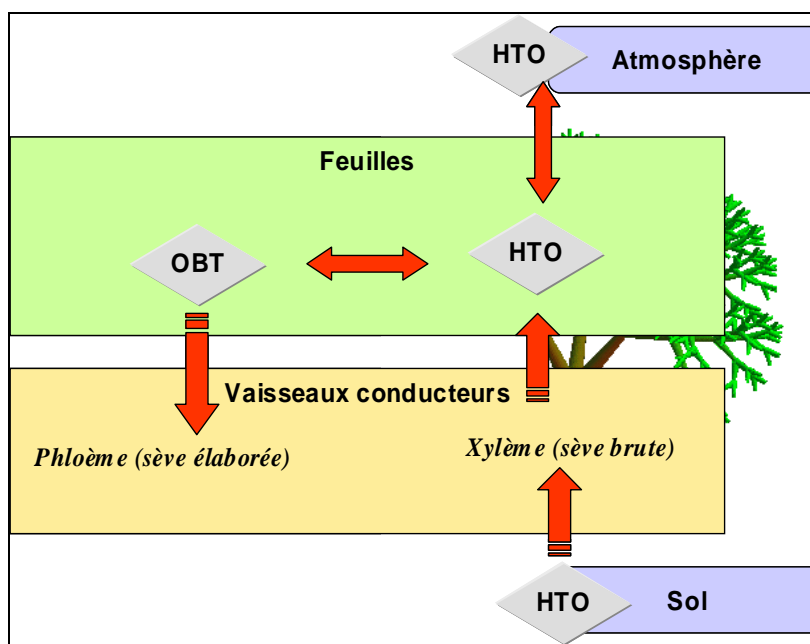


Figure 4 - Modélisation simplifiée des transferts de tritium dans les arbres (Strack et al., 2005).

La concentration du tritium dans l'eau libre des feuilles de la plante (lieu de la photosynthèse) dépend de celle de la sève brute (xylème) transportant l'eau et les sels minéraux puisés dans le sol par les racines et des échanges avec la vapeur d'eau atmosphérique *via* les stomates des feuilles (régulation des échanges gazeux). Lorsque les plantes absorbent de la vapeur d'eau tritiée par voie foliaire, l'activité de l'eau dans les feuilles reste toujours inférieure à celle de la vapeur d'eau atmosphérique, même quand les expositions sont suffisamment longues pour arriver à un état d'équilibre dynamique, en raison de la dilution de l'eau des feuilles par l'eau qui provient du sol et qui est non contaminée ou moins contaminée que l'air. Les molécules organiques synthétisées dans les feuilles, avec leur part de tritium lié (échangeable ou non), sont elles-mêmes transformées en d'autres molécules par le métabolisme de la plante, puis transportées par la sève élaborée (phloème) vers les autres parties de la plante, y compris les racines. Certaines de ces molécules peuvent servir à fabriquer des tissus de structure (bois) ou de réserve (graines, tubercules...); dans ce cas, si du tritium a été incorporé au moment de la synthèse de ces molécules, *via* le sol ou par échange direct avec l'atmosphère, il peut persister durablement dans ces tissus, jusque bien après la fin de l'exposition de la plante au tritium de l'environnement. Le cas échéant, une partie de ces tissus de structure ou de réserve peut se retrouver dans la litière puis dans l'humus des sols (voir paragraphe précédent). ***L'ensemble de ces phénomènes détermine une rémanence plus ou moins longue du tritium organiquement lié (et non échangeable) dans les végétaux mais ne peut en aucune façon être assimilé à de la bioaccumulation au sens défini au paragraphe 3.1.***

Ainsi, les données disponibles à l'IRSN concernant le tritium l'environnement terrestre tendent à montrer que, d'une manière générale, l'activité du tritium lié à la matière organique décroît avec une période effective⁽³⁾ proche de 6 ans pour les échantillons végétaux et animaux, et de 5 ans pour les sols. Cette période effective plus courte que la période radioactive du tritium permet de conclure qu'il n'y a pas de bioaccumulation dans les écosystèmes terrestres, le tritium ayant tendance à « disparaître » plus rapidement du fait des différents processus de transfert.

Les rares échantillons (feuilles d'arbres) qui présentent actuellement des activités de tritium organiquement lié un peu plus élevées que la moyenne proviennent de stations probablement influencées par un niveau d'activité ambiante plus élevé, actuel ou passé, avec une possibilité de rémanence dans ce type de végétaux, telle que décrite ci-dessus.

Le nombre d'études sur les situations de rémanence du tritium en France étant finalement faible, l'IRSN envisage de mener des études d'observation plus fine sur la répartition du tritium dans les végétaux, afin de disposer de données complémentaires. Toutefois, compte tenu des faibles activités de tritium généralement constatées dans l'environnement terrestre, de telles études nécessiteront de recourir à des techniques analytiques permettant d'atteindre des limites de détection suffisamment basses. Cette nécessité apporte un argument supplémentaire en faveur de l'acquisition en cours à l'IRSN d'un nouvel équipement de mesure du tritium par l'hélium-3 (voir §2.3).

Remarque : les données pour le tritium relatives aux produits d'origine animale du milieu terrestre sont peu nombreuses et ce sont surtout des modèles physiologiques d'évolution du tritium (en fonction du comportement de l'eau et de la matière organique des animaux) qui ont été développés et qui ont fait l'objet de publications. Les mesures de tritium effectuées en France dans des échantillons de produits d'origine animale en milieu terrestre, ne montrent de valeurs particulièrement élevées. De plus, les facteurs de transfert sont toujours inférieurs à l'unité (et inférieurs à 0,5 pour le tritium ingéré par l'animal sous forme de matière organique végétale), ce qui va dans le sens d'une absence de bioaccumulation du tritium dans les denrées d'origine animale.

³ La période effective (T_{eff}) d'un radionucléide dans un milieu donné représente la période au bout de laquelle, de façon statistique (analyse d'une série de mesures), la moitié de la quantité initiale du radionucléide présent dans ce milieu disparaît, sous l'effet conjugué de la décroissance radioactive (de période T_{rad}) et de processus écologiques (agissant globalement selon une période T_{eco}). La période effective dépend des deux autres périodes selon la relation suivante : $1/T_{\text{eff}} = 1/T_{\text{eco}} + 1/T_{\text{rad}}$. Si la période écologique est très grande (absence de processus écologique conduisant à la disparition du radionucléide du compartiment considéré), la période effective est proche de la période radioactive ; à l'inverse, si la période effective est significativement plus courte que la période radioactive, cela signifie que des processus écologiques importants concourent à l'élimination du radionucléide du milieu considéré (transferts à d'autres compartiments).

3.2.4 Comportement du tritium dans les milieux aquatiques continentaux et marins

Les données relatives à la distribution du tritium dans les organismes aquatiques concernent surtout le milieu marin, tout particulièrement à proximité des côtes françaises de la Manche et des côtes britanniques (baie de Cardiff).

En zone littorale française de la Manche, l'IRSN a pu déterminer des profils de concentration du tritium libre et du tritium organiquement lié dans des algues (figure 5). Par rapport au bruit de fond mesuré dans l'Atlantique (Concarneau), les résultats montrent une influence des rejets de tritium de l'usine de traitement de combustibles usés d'AREVA La Hague en Manche, à partir du golfe normand-breton en direction du Pas-de-Calais. L'influence de l'usine s'observe surtout dans le Nord-Cotentin où les concentrations maximales mesurées atteignent une dizaine de Bq/L d'eau de combustion dans les algues (OBT). L'IRSN a obtenu d'autres résultats similaires lors de campagnes successives en Manche, pour divers organismes marins (algues, mollusques, crustacés et poissons). **D'une façon générale, les mesures de tritium faites dans divers organismes marins prélevés sur les côtes de la Manche au cours des deux dernières décennies montrent que le rapport entre l'activité du tritium organiquement lié des échantillons analysés et celle du tritium de l'eau de mer est proche de 1.** Il est même un peu plus faible pour le *Fucus*, sans doute en raison de l'influence des périodes d'exondation des algues à marée basse, pendant lesquelles des échanges pourraient avoir lieu avec la vapeur d'eau atmosphérique et l'eau de pluie dont l'activité de tritium est plus faible que pour l'eau de mer.

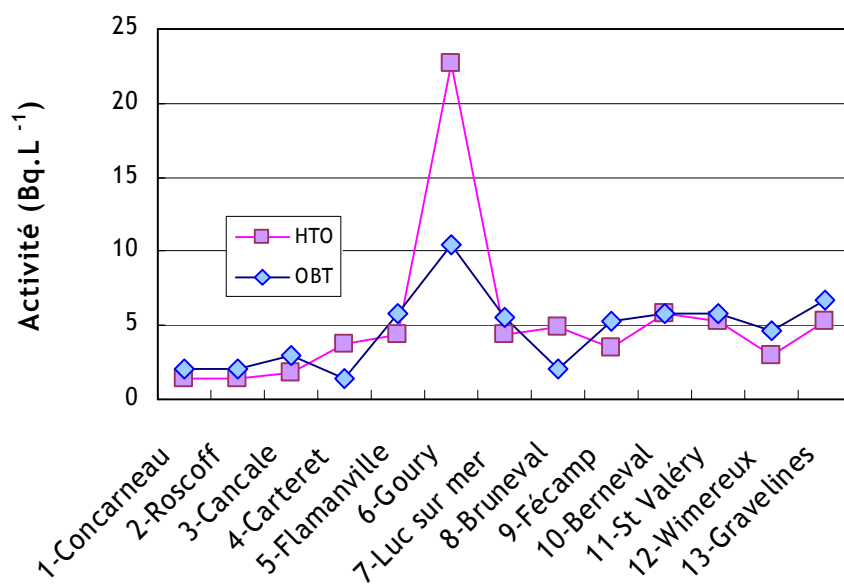


Figure 5 - Concentrations du tritium libre (HTO) mesurées dans l'eau de mer (Bq/L) et du tritium organiquement lié (OBT) mesurées dans des algues (Bq/L eau de combustion) entre Concarneau et Gravelines au cours des années 2001 et 2002 (données IRSN).

Des études britanniques, menées dans la baie de Cardiff et l'estuaire de la Severn, ont mis en évidence la présence d'activités de tritium dans des espèces marines (poissons plats, moules) dépassant de plus de cent fois l'activité de tritium dans l'eau de mer (Edwards, 1998). Tandis que les activités volumiques étaient à l'époque inférieures à 100 Bq/L dans l'eau de mer, une valeur de 37 800 Bq.kg⁻¹ frais a été constatée dans un poisson plat. L'estuaire de la Severn reçoit les rejets de l'usine Nycomed Amersham plc de Cardiff qui synthétise des molécules tritiées pour l'industrie pharmaceutique (acides aminés, acides gras, lipides, précurseurs acides nucléiques, hydrates de carbone, prostaglandines, vitamines, stéroïdes, alcaloïdes...). L'usage de ces molécules marquées est d'autant plus efficace que leur rapport isotopique ³H/H est plus élevé.

Lorsque ces composés ou des produits intermédiaires se retrouvent dans le milieu naturel, même à très faible concentration, ils ont une forte affinité pour la matière organique, et ce d'autant plus s'ils sont hydrophobes. Les auteurs des études précitées ont émis l'hypothèse d'une formation de matières organiques particulières par sorption des molécules organiques tritiées de l'eau sur les sédiments fins, complétée par une transformation bactérienne au sein du lit sédimentaire de surface. Les particules

sédimentaires ainsi formées seraient alors filtrées par les moules ou ingérées par les poissons vivant en contact avec les sédiments. Les modes de vie et d'alimentation des organismes expliquent les différences d'activité observées entre d'une part les organismes herbivores ou benthiques, d'autre part les poissons pélagiques beaucoup moins contaminés par le tritium. Une fois ces aliments tritiés ingérés par les animaux, le tritium peut alors se fixer préférentiellement dans la matière vivante, entraînant un facteur de concentration très élevé par rapport au tritium libre (HTO) présent dans le milieu de vie de ces animaux.

Les molécules organiques marquées par du tritium peuvent rester stables lorsqu'elles sont enfouies dans la colonne sédimentaire, en l'absence de toute minéralisation. Ainsi, une étude britannique (Moris, 2006) a montré que les concentrations de tritium le long d'une carotte sédimentaire prélevée dans le marais de la Severn sont corrélées dans le temps avec les activités de tritium rejetées par Amersham. Cet enregistrement chronologique suggère que le tritium organique est retenu pendant plusieurs décennies dans les sédiments après le dépôt, sans perte importante du fait de la conservation de la matière organique. Ce phénomène de rémanence est à rapprocher de celui décrit plus haut pour le tritium dans les matières organiques des sols provenant de la décomposition de la litière végétale.

Ainsi, les valeurs élevées des facteurs de concentration observées chez des organismes marins prélevés dans la baie de Cardiff et l'estuaire de la Severn ne correspondent pas à une bioaccumulation du tritium de l'eau de mer dans ces organismes, mais à une rémanence du tritium présent à des teneurs élevées dans des molécules organiques ingérées par ces organismes. Ce tritium se retrouve alors organiquement lié, à des concentrations élevées, dans les tissus des animaux avant d'être recyclé par le métabolisme de l'organisme et de se diluer peu à peu dans l'hydrogène stable de l'eau de mer ou de l'eau interne des organismes⁽⁴⁾.

Rappelons que toutes les mesures de tritium dans l'eau de mer réalisées à Sellafield, Bristol ou La Hague concernent le tritium « total » présent dans les prélèvements sans distinction des formes chimiques présentes, HTO et OBT, contrairement à ce qui est réalisé lors des mesures de tritium dans les organismes.

Cet exemple singulier de comportement du tritium, à l'origine d'une controverse sur l'existence éventuelle d'une bioaccumulation du tritium, montre l'intérêt de mieux déterminer les formes chimiques du tritium dans l'eau de mer, notamment le tritium lié à des molécules organiques (OBT), afin de permettre une interprétation correcte des facteurs de concentration calculés à partir des résultats de mesures dans les organismes marins. Ceci apparaît même indispensable lorsque des mesures mettent en évidence des concentrations de tritium élevées dans des organismes aquatiques ; en tout état de cause, les facteurs de concentration déterminés pour le tritium lié à la matière organique ne doivent pas être assimilés à des facteurs de bioaccumulation, tels que définis au paragraphe 3.1.

3.3 Conclusions sur la bioaccumulation du tritium

A ce jour, les différentes études menées sur le comportement du tritium dans l'environnement ne mettent pas en évidence une bioaccumulation du tritium, au sens strict du terme. En revanche, une rémanence plus ou moins longue du tritium peut être observée dans certains tissus végétaux après incorporation du tritium dans la matière organique par photosynthèse, et subséquentement dans les litières et matières humiques des sols provenant des végétaux. Cette rémanence reste modérée puisque, globalement, la période effective du tritium dans les organismes terrestres est significativement inférieure à la période radioactive du tritium.

De même, une rémanence de tritium peut être observée dans les organismes aquatiques lorsque le tritium rejeté dans l'environnement est lié à des molécules organiques. Il s'ensuit alors une contamination préférentielle des particules organiques sources alimentaires de certains animaux aquatiques qui se trouvent à leur tour contaminés à des concentrations significativement plus élevées que celles observées dans l'eau ambiante. Les facteurs de concentration déterminés par le rapport

⁴ Un processus semblable pourrait expliquer les activités relativement élevées de tritium organiquement lié (quelques dizaines à plus d'une centaine de Bq/L) observées dans divers organismes marins (algues, mollusques, crustacés et poissons) prélevés en Manche lors de la réalisation, par l'IPSN au début des années 1980, du point zéro radioécologique de la centrale nucléaire de Flamanville. Toutefois, en l'absence de mesures de tritium libre et de tritium dans l'eau de mer, cette interprétation doit être considérée avec prudence.

entre le tritium organiquement lié dans ces organismes et le tritium libre du milieu aquatique sont dès lors nettement supérieurs à 1, mais ne correspondent pas à une bioaccumulation.

L'usage de facteurs de concentration doit donc être fait avec prudence. Il s'agit d'indicateurs qui, lorsqu'ils s'écartent significativement de 1, doivent inciter à approfondir les études afin de mieux comprendre les mécanismes de transfert et de spéciation du tritium. En aucune façon ils ne doivent être assimilés à un facteur de bioaccumulation.

Rares sont les études et les données permettant de caractériser correctement la rémanence du tritium ; dans le contexte d'une controverse au sujet d'une possible bioaccumulation de tritium, l'IRSN estime qu'il est utile d'entreprendre des études permettant de mieux apprécier la rémanence du tritium :

- dans les végétaux, grâce au développement de mesures du tritium libre et du tritium organiquement lié, avec des limites de détection adaptées à la gamme des valeurs d'activité du tritium dans l'environnement ;
- dans les organismes aquatiques, en s'intéressant particulièrement à la spéciation du tritium dans les milieux de vie et au tritium fixé aux substances constituant l'alimentation de ces organismes.

Ces connaissances plus précises sur la rémanence du tritium et sur les mécanismes et paramètres associés permettront alors d'améliorer la modélisation du comportement du tritium dans les écosystèmes, en particulier :

- pour modéliser la fraction du tritium qui se retrouve incorporée ou piégée dans la matière organique lors de la photosynthèse : actuellement, les paramètres nécessaires à la prédiction précise des transferts restent rares et surtout éparses, en particulier pour des rejets ponctuels. La très grande variabilité du comportement du tritium en fonction de la durée des expositions des organismes au tritium et des paramètres environnementaux (humidité de l'air, état hydrique du végétal, jour/nuit, durée du rejet...) fait que chaque résultat d'essai donne des valeurs de paramètres spécifiques des conditions dans lesquelles a eu lieu l'expérimentation et donc difficilement généralisables. Ainsi, l'IRSN a entrepris de suivre, sur un cycle de trois ans, un écosystème prairial simplifié exposé aux rejets atmosphériques d'effluents tritiés de l'usine AREVA NC à La Hague. Ce suivi permettra de constituer une série de mesures sur la dynamique du tritium atmosphérique et du tritium libre et organiquement lié dans les principaux compartiments de l'écosystème constitué par le sol, la solution du sol et l'herbe ; les résultats seront ensuite utilisés pour améliorer la modélisation de la dynamique du tritium dans ce type d'écosystème terrestre ;
- pour compléter la modélisation du tritium en milieu aquatique, qui à ce jour ne tient compte principalement que des mécanismes de transport, de diffusion et de dispersion, et ce uniquement pour l'eau tritiée (HTO) de la colonne d'eau. Les interactions aux interfaces (air et sédiment) ainsi que la conversion de l'eau tritiée en tritium organiquement lié sont généralement ignorées, sans que leur importance soit véritablement connue. Concernant les transferts de tritium aux organismes aquatiques, la plupart des modèles disponibles reposent sur une approche d'équilibre isotopique, pour laquelle il a été prouvé qu'elle était généralement satisfaisante pour le tritium libre des tissus. La modélisation des concentrations de tritium organiquement lié dans les organismes aquatiques, moins répandue, est abordée de manière plus variable, avec parfois des approches dynamiques tenant compte des processus physiologiques. Ce sont d'ailleurs ces modèles qui donnent les résultats les plus proches des valeurs mesurées, lors des comparaisons modèles-mesures. Ils demandent cependant encore à être améliorés et validés. Dans ce contexte, l'IRSN prévoit d'entreprendre, à moyen terme, une série d'expérimentations en milieu contrôlé de façon à acquérir les données de base pour établir une modélisation plus avancée, tenant compte de la dynamique de rétention et d'élimination du tritium sous forme HTO et OBT. Pour cela, l'IRSN propose de s'intéresser au devenir du tritium au sein de modèles biologiques clefs dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes aquatiques.

Ces développements devraient renforcer la capacité des modèles à prévoir la rémanence du tritium dans certains compartiments de l'environnement et, par conséquent, amélioreront la robustesse des expertises menées sur l'impact du tritium dans l'environnement.

4. LA CONNAISSANCE DES RISQUES DUS AU TRITIUM INCORPORÉ PAR LES ORGANISMES VIVANTS EST-ELLE SUFFISANTE ?

Il s'agit d'une question qui touche à la fois l'évaluation du risque pour la santé de l'homme exposé au tritium (cf. rapport IRSN/DRPH -2009-18) et celle du risque pour les écosystèmes en présence de tritium.

Il convient de rappeler que le tritium est un radionucléide émetteur bêta pur, avec une énergie de rayonnement faible (5,7 keV en moyenne), d'où un faible pouvoir pénétrant (parcours libre moyen dans l'eau inférieur à 1 µm). Dans ces conditions, le tritium n'entraîne généralement pas de risque d'irradiation externe lorsqu'il est dispersé dans l'environnement, sauf éventuellement pour les organismes unicellulaires de petite taille, et la question de ses effets biologiques ne se pose que lorsqu'il est incorporé par des organismes vivants, végétaux ou animaux.

Le tritium étant un isotope radioactif de l'élément hydrogène, constituant majeur de la matière vivante, la question de ses effets sur les organismes vivants se pose de manière particulière lorsqu'il est lié à des molécules organiques, notamment lorsque celles-ci sont constitutives de l'ADN qui est une cible privilégiée des effets délétères des rayonnements ionisants. Trois aspects sont plus particulièrement discutés ci-après, dans le contexte de l'évaluation des risques du tritium pour les écosystèmes :

- l'influence de la spéciation du tritium sur l'évaluation des doses reçues par les organismes vivants ;
- les connaissances sur les effets nocifs du tritium et les relations exposition-effets ;
- l'efficacité biologique relative du rayonnement émis par le tritium.

4.1 Prise en compte de la spéciation du tritium pour l'évaluation des doses reçues par les organismes vivants

La rémanence du tritium incorporé dans les organismes dépend fortement de la forme chimique de celui-ci - libre (HTO) ou organiquement lié (OBT) - au moment de son incorporation. Ainsi, chez les mammifères, la période biologique du tritium est en moyenne de 10 jours pour l'eau tritiée et peut varier de quelques jours à plusieurs années pour le tritium organiquement lié, en fonction du caractère labile des atomes d'hydrogène auxquels il se substitue dans les molécules organiques et de la durée de vie de celles-ci. Ainsi, selon les auteurs du rapport du groupe AGIR⁽⁵⁾, de nombreuses données tant animales qu'humaines suggèrent que l'élimination du tritium de l'organisme pourrait se faire en fonction de trois paramètres : le premier est relatif au tritium de l'eau corporelle ; le deuxième correspondant à la fraction de tritium liée à des composés organiques des tissus ; le troisième correspond à la fraction de tritium incorporée dans des composants structurels à faible taux de renouvellement. Ces paramètres déterminent une rémanence plus ou moins longue du tritium incorporé.

L'approche actuellement retenue pour évaluer l'exposition des organismes vivants au tritium présent dans leur environnement consiste à décrire les écosystèmes de manière simplifiée pour représenter la distribution du radionucléide au sein des habitats et les voies correspondantes d'exposition des organismes vivants, puis à utiliser des coefficients de dose unitaire déterminés par le calcul. Ces coefficients établissent une relation entre les activités des radionucléides soit dans les milieux de vie (exprimées en Bq/L ou Bq/kg), soit dans les organismes vivants (Bq/kg de tissu), selon la voie d'exposition considérée, et les doses ou les débits de dose absorbée (Gy ou Gy par unité de temps) reçus par les organismes. Ces coefficients ont été déterminés pour trois séries d'organismes de référence, animaux ou végétaux, respectivement pour les écosystèmes terrestre, aquatique continental et marin. Actuellement, les hypothèses soutenant leur mode de calcul ne sont valides que

⁵ AGIR. Review of risks from tritium. Report of the Independent Advisory Group on Ionising Radiation. Health Protection Agency (2007)

pour le tritium sous forme HTO dans le milieu d'exposition (distribution homogène) et la valeur déterminée est proche de $3 \cdot 10^{-6}$ $\mu\text{Gy/h}$ par Bq/kg de tritium incorporé, pour l'exposition interne, quel que soit l'organisme considéré. Cela signifie qu'un organisme contaminé à hauteur de 10^6 Bq/kg (situation jamais observée dans l'environnement français) serait exposé à un débit de dose d'environ 3 $\mu\text{Gy/h}$.

L'IRSN considère que la méthode actuellement utilisée pour déterminer les doses reçues par les organismes non humains exposés au tritium présent dans leur milieu de vie est très simplifiée et uniquement adaptée au tritium libre, en supposant une distribution homogène ; elle pourrait faire l'objet d'améliorations afin de mieux tenir compte du tritium organiquement lié auquel ces organismes pourraient être exposés. En effet, le tritium organiquement lié peut se trouver fixé à long terme dans des constituants cellulaires (rémanence) et irradier des cibles biologiques radiosensibles, notamment l'ADN, alors que celles-ci sont peu atteintes par le rayonnement émis par le tritium sous forme HTO, en raison du faible parcours moyen de ce rayonnement. **En conséquence, l'IRSN estime que les éventuels effets biologiques du tritium organiquement lié ne sont pas correctement pris en compte dans les modèles dosimétriques applicables aux organismes vivant dans les différents écosystèmes en raison d'un déficit de données expérimentales à ce sujet.** Ainsi, dans le cadre des expérimentations en milieu contrôlé projetées par l'IRSN, mentionnées au paragraphe 3.3, il est prévu d'étudier les effets de la rémanence du tritium à différentes échelles d'observation du vivant, en considérant les différentes formes de tritium dans la source d'exposition (eau tritiée, molécules organiques). Ces expérimentations porteront sur un nombre limité d'espèces représentatives des écosystèmes d'eau douce et marins : des micro-crustacés (*Daphnia magna*), des vers nématodes (*Caenorhabditis elegans*) et des mollusques bivalves (*Crassostrea gigas* et *Mytilus edulis*). Les données acquises lors de ces expérimentations devraient permettre de savoir s'il est nécessaire de raffiner les modèles de calcul de dose ou, au contraire, s'il est acceptable de conserver des modèles simplifiés tels que ceux utilisés jusqu'à présent.

4.2 Connaissances sur les effets nocifs du tritium

Concernant les effets toxiques du tritium sur les organismes non humains, les données disponibles provenant d'études scientifiques ne portent que sur des animaux (invertébrés ou vertébrés) et principalement la forme HTO. Il n'existe aucune donnée relative à la toxicité du tritium pour des végétaux. Des travaux récents portant sur l'exposition au tritium d'un mollusque marin (*Mytilus edulis*) au stade de l'œuf et au stade adulte, ont mis en évidence une grande sensibilité de cette espèce à partir de certaines valeurs de débit de dose induit par le tritium incorporé : des dommages à l'ADN ont été observés à partir de 13 $\mu\text{Gy/h}$ et des conséquences cytogénétiques (aberrations chromosomiques) sont apparues de façon significative dès 1,3 $\mu\text{Gy/h}$. Des effets sur le développement de *Daphnia magna* (micro-crustacé aquatique) rapportés dans la littérature ont été observés à partir de 3 $\mu\text{Gy/h}$ et s'aggravent au fil des générations. Les mécanismes à l'origine de ces effets et leurs conséquences écologiques sont méconnus à ce jour.

Il est important de souligner que les débits de dose pour lesquels des effets ont été observés pour ces espèces sont significativement plus faibles que la valeur de 10 $\mu\text{Gy/h}$ habituellement considérée comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma. Même si ces débits de dose correspondent à des activités de tritium dans les milieux nettement plus élevées que celles observées dans l'environnement actuel, y compris auprès des installations nucléaires, il est nécessaire de conforter la robustesse des évaluations de risque du tritium sur les écosystèmes car :

- les débits de dose estimés à partir de la concentration du tritium dans le milieu de vie résultent de calculs simplifiés, réalisés sous l'hypothèse d'un équilibre instantanée (i.e., facteur de bioconcentration égal à l'unité) entre le milieu ambiant et l'organisme exposé au tritium ;
- les débits de dose ainsi calculés ne sont pas pondérés pour prendre en compte l'efficacité biologique du rayonnement bêta, par manque de connaissances à ce sujet (voir également § 4.1 et 4.3). Dans ces conditions, ils ne peuvent en principe pas être directement comparés à un débit de dose sans effet déterminé à partir de données d'écotoxicité chronique obtenues sous irradiation externe par des rayonnement gamma.

Ainsi, contrairement à ce qui est habituellement observé pour la toxicité des rayonnements gamma par irradiation externe, les données d'écotoxicité disponibles pour le tritium indiquent que ce sont les

invertébrés et non les vertébrés qui apparaissent les plus sensibles. *Même si les niveaux d'exposition observés actuellement dans l'environnement ne laissent pas présager de risque significatif pour ces organismes, l'IRSN prévoit de poursuivre des recherches visant à mieux connaître les effets toxiques du tritium, en privilégiant l'étude des invertébrés aquatiques*, d'une part pour confirmer cette sensibilité plus élevée des invertébrés en élargissant la diversité des espèces testées, d'autre part, si cette confirmation est avérée, pour rechercher les mécanismes spécifiques à l'origine des effets constatés. L'IRSN prévoit également de mener des études expérimentales sur un invertébré ayant un court cycle de vie (*Daphnia magna* ou *Caenorhabditis elegans*) pour mieux comprendre et quantifier le risque d'induction et de transmission transgénérationnelle d'altérations génétiques, telles que rapportées dans la littérature scientifique.

Les données scientifiques issues de ces recherches devraient permettre de modifier ou d'adapter, si nécessaire, le critère actuellement considéré pour la protection écologique vis-à-vis des rayonnements ionisants, suite aux récents travaux européens (ERICA, 2006).

4.3 Connaissance de l'efficacité biologique relative (EBR) du tritium

L'EBR d'un type de rayonnement donné est défini par le rapport entre la dose de rayonnement de référence (X ou γ) et la dose du rayonnement à tester (le rayonnement β du tritium dans le cas présent) qui produisent le même effet biologique. L'expérience montre que l'EBR dépend de l'espèce animale ou végétale (ou du type de cellules) considérée, de l'effet biologique étudié et des conditions d'irradiation (type de rayonnement, dose, débit de dose, fractionnement des doses).

La notion d'EBR a principalement été historiquement développée pour la radioprotection humaine. A ce titre, il existe très peu de données concernant l'efficacité biologique relative du tritium pour les espèces non humaines autres que des mammifères ; par ailleurs, les critères d'effet dont la sensibilité relative au tritium par rapport à rayonnement gamma a été étudiée, portent essentiellement sur la survie cellulaire et l'apparition de dommages de l'ADN *in vitro*. Ils sont donc peu pertinents pour une interprétation sur un plan écologique, contrairement à des critères d'effet tels que ceux relatifs à la croissance ou à la capacité reproductive, directement interprétables en termes d'impact sur la démographie des populations d'espèces végétales ou animales.

Récemment, une compilation des valeurs d'EBR trouvées dans la littérature et une analyse de leur pertinence pour leur application aux cas des espèces non humaines et des effets biologiques de nature déterministe⁶ ont été publiées dans le cadre du projet ERICA (2006 ; pour plus de détails, voir le rapport IRSN/DEI-2009-05). Pour ce qui concerne spécifiquement le tritium (HTO ou molécules marquées), comme exposé précédemment, seules six études *in vivo* (7 valeurs d'EBR) existent ; elles concernent les effets du tritium sur la reproduction des vertébrés (mammifères et poissons) ; ces valeurs sont comprises entre 1 et 3,5.

S'agissant du calcul des doses reçues par les espèces non humaines exposées au tritium sous forme HTO, l'incertitude sur l'EBR (par rapport à un rayonnement gamma), si l'on suppose que sa valeur varie entre 1 et 3 quelle que soit la forme du tritium dans la source d'exposition, affecte le résultat de moins d'un ordre de grandeur, ce qui est peu en regard des incertitudes plus importantes qui existent dans la chaîne de calcul dosimétrique (facteurs de transfert, période biologique ; voir § 4.1) et dans la détermination des effets biologiques et écologiques en résultant.

L'IRSN observe qu'il n'existe pratiquement aucune donnée pour les expositions chroniques à l'eau tritiée et que les études relatives à l'EBR pour les formes organiques du tritium sont peu nombreuses pour les organismes non humains. Les espèces étudiées jusqu'à présent et leurs stades de vie sont peu diversifiés ; il en est de même pour les types d'effets biologiques explorés. La pertinence de la notion d'EBR pour les espèces non humaines, pour lesquelles les effets auxquels on s'intéresse sont de type déterministe, est actuellement mal connue. Pour toutes ces raisons, l'IRSN projette de mener des expériences en milieu contrôlé, à l'échelle des 4 ans à venir, pour acquérir des connaissances sur la sensibilité relative d'une exposition chronique au tritium sous différentes formes (HTO et molécules organiques marquées diverses) par rapport à une irradiation chronique gamma externe, en considérant des types d'effets pertinents d'un

⁶ Les effets biologiques de nature déterministe désignent les pertes de fonction d'organes ou de tissus apparaissant de manière systématique lorsque ces organes ou tissus reçoivent une dose dépassant un seuil donné. L'importance ou la gravité des pertes de fonction augmente avec la dose reçue au-delà de ce seuil.

point de vue écologique (ex. survie, croissance, reproduction...). Ces expériences seront conduites sur un nombre limité de modèles biologiques clefs dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes aquatiques.

5. CONCLUSIONS

L'IRSN estime que les processus physico-chimiques et biologiques déterminant le devenir du tritium, en tant qu'isotope radioactif de l'hydrogène, sont bien connus dans leur ensemble, à la fois dans le cycle de l'eau et dans les grandes fonctions métaboliques des organismes vivants (photosynthèse, métabolisme énergétique, anabolisme/catabolisme...). Aucun de ces processus n'est susceptible de conduire à concentrer davantage le tritium dans la matière organique que l'hydrogène stable dont il suit le même comportement. La bonne compréhension du devenir du tritium dans l'environnement nécessite de déterminer la forme chimique (appelée aussi « spéciation ») du tritium contenu dans les échantillons analysés. Les principales formes de tritium habituellement considérées dans les études environnementales sont :

- l'eau tritiée lorsque le tritium fait partie des molécules d'eau (HTO) qui peuvent partiellement se dissocier en T^+ et OT^- ; on parle également de « tritium libre » pour l'eau tritiée tissulaire (intra ou extracellulaire) d'un échantillon biologique ;
- le tritium organiquement lié (TOL) ou « organically bound tritium » (OBT), lorsque le tritium est lié à des molécules organiques ; il peut être alors soit facilement échangeable (TOL-E) avec l'hydrogène ambiant, comme par exemple le tritium associé à un radical acide, soit non-échangeable (TOL-NE) car fixé par une liaison covalente.

Les protocoles de traitement des échantillons prélevés dans l'environnement et les techniques analytiques associées permettent de quantifier de manière spécifique le tritium libre et le tritium lié à la matière organique, échangeable et non échangeable. Toutefois, la distinction de ces différentes formes de tritium n'est pas toujours faite dans les études publiées et, selon les laboratoires ou les auteurs de publications, l'« OBT » peut signifier soit la totalité du tritium organiquement lié, soit uniquement sa fraction non échangeable, ce qui rend parfois difficiles les comparaisons des résultats de différents auteurs. Il est donc important que les résultats d'expérimentations en laboratoire ou de mesures *in situ* soient interprétés en tenant compte des protocoles de traitement des échantillons, ce qui suppose que ceux-ci soient décrits.

Il est également important d'harmoniser l'expression des résultats de mesure du tritium en fonction de leur usage :

- systématiquement en Bq/L, que ce soit pour HTO ou OBT, lorsqu'il s'agit d'étudier le devenir du tritium dans l'environnement ou de détecter une élévation éventuelle de l'activité du tritium dans l'environnement ;
- en Bq/kg_{fraîs}, Bq/L ou Bq/m³ lorsque les résultats sont utilisés pour faire des évaluations de doses dues à l'ingestion de produits tritiés (en distinguant la part liée à la matière organique, s'agissant des aliments) ou à l'inhalation.

La maîtrise de la qualité métrologique en laboratoire n'est pas une condition suffisante à l'obtention de résultats pertinents et une vigilance particulière doit être assurée dès l'étape de prélèvement des échantillons dans l'environnement, compte tenu de la forte mobilité du tritium, afin de prévenir les échanges incontrôlés de tritium avec le milieu ambiant avant analyse et d'éviter de se méprendre dans l'interprétation des résultats.

Depuis plusieurs décennies, de nombreuses mesures de tritium ont été réalisées dans l'environnement français, principalement au voisinage des installations nucléaires. Les résultats ainsi obtenus apportent une bonne connaissance des gammes des valeurs d'activité du tritium dans les différents milieux et montrent des évolutions globalement à la baisse au cours des 20 dernières années. Aujourd'hui, pour poursuivre l'observation de ces évolutions, il est nécessaire de recourir à des techniques de mesure permettant d'atteindre une limite de détection de l'ordre de 1 Bq/L, voire inférieure.

Dans un tel contexte, l'IRSN considère que le choix des techniques analytiques pour mesurer le tritium doit être adapté à l'objectif poursuivi :

- la technique de mesure par scintillation liquide, la plus couramment utilisée, est suffisante assurer une surveillance de routine visant à détecter rapidement toute élévation anormale de l'activité de tritium dans l'environnement ;
- par contre, pour suivre et comprendre le devenir du tritium dans l'environnement, il est nécessaire de recourir à des techniques plus fines (mesure par spectrométrie de masse de l'hélium-3), en distinguant systématiquement le tritium libre (HTO) et le tritium organiquement lié (OBT) dans les échantillons biologiques, dans les sols ou dans les sédiments.

Conformément aux orientations retenues par l'IRSN pour sa stratégie de surveillance de la radioactivité de l'environnement, l'IRSN est en train de se doter d'un équipement de mesure du tritium par l'hélium-3 qui lui permettra de maintenir son rôle de suivi de l'état radiologique de l'environnement et de développer un mode de surveillance complémentaire de celui appliqué par les exploitants nucléaires dans le cadre des prescriptions réglementaires qui s'imposent à eux.

A ce jour, les différentes études menées sur le comportement du tritium dans l'environnement ne conduisent pas à mettre en évidence de bioaccumulation du tritium. En revanche, une rémanence plus ou moins longue du tritium peut être observée dans certains tissus végétaux après incorporation du tritium dans la matière organique par photosynthèse et, subséquemment dans les litières et matières humiques des sols provenant des végétaux. Cette rémanence reste modérée puisque globalement, la période effective du tritium dans les organismes terrestres est significativement inférieure à la période radioactive du tritium.

De même, une rémanence de tritium peut être observée dans les organismes aquatiques lorsque le tritium rejeté dans l'environnement est lié à des molécules organiques. Il s'ensuit alors une contamination préférentielle des particules organiques constituant l'alimentation de certains animaux aquatiques, qui se trouvent à leur tour contaminés à des concentrations significativement plus élevées que celles observées dans l'eau ambiante. Les facteurs de concentration déterminés par le rapport entre le tritium organiquement lié dans ces organismes et le tritium libre du milieu aquatique sont dès lors nettement supérieurs à 1, mais ne correspondent pas à une bioaccumulation.

L'IRSN estime que l'interprétation des facteurs de concentration déterminés dans les diverses études publiées doit être menée avec prudence. Il s'agit d'indicateurs qui, lorsqu'ils s'écartent significativement de 1, doivent inciter à approfondir les études afin de mieux comprendre les mécanismes de transfert et de spéciation du tritium. En aucune façon ils ne doivent être assimilés à un facteur de bioaccumulation.

L'IRSN constate que rares sont les études et les données permettant de caractériser correctement la rémanence du tritium. Dans le contexte d'une controverse au sujet d'une possible bioaccumulation de tritium rejeté par les activités nucléaires, l'IRSN estime qu'il est utile d'entreprendre des études permettant de mieux apprécier la rémanence du tritium :

- dans les végétaux, grâce au développement de mesures du tritium libre et du tritium organiquement lié, avec des limites de détection adaptées à la gamme des valeurs d'activité du tritium dans l'environnement ;
- dans les organismes aquatiques, en s'intéressant particulièrement à la spéciation du tritium dans les milieux de vie et au tritium fixé aux substances constituant l'alimentation de ces organismes.

Ces connaissances plus précises sur la rémanence du tritium et sur les mécanismes et paramètres associés permettront alors d'améliorer la modélisation du comportement du tritium dans les écosystèmes, en particulier pour modéliser la fraction du tritium qui se retrouve incorporée ou piégée dans la matière organique lors de la photosynthèse et pour compléter la modélisation du tritium en milieu aquatique, qui à ce jour ne tient compte principalement que des mécanismes de transport, de diffusion et de dispersion, et ce uniquement pour l'eau tritiée (HTO) de la colonne d'eau.

Concernant l'évaluation des risques pour les écosystèmes exposés au tritium présent dans l'environnement, l'IRSN considère que la méthode actuellement utilisée pour déterminer les doses reçues par les organismes non humains est très simplifiée et uniquement adaptée au tritium libre, en supposant une distribution homogène. L'IRSN estime également que les éventuels effets biologiques du tritium organiquement lié ne sont pas correctement pris en compte dans les modèles dosimétriques

applicables aux organismes vivant dans les différents écosystèmes, en raison d'un déficit de données expérimentales à ce sujet. Or le tritium organiquement lié peut se trouver fixé à long terme dans des constituants cellulaires (rémanence) et irradier des cibles biologiques radiosensibles, notamment l'ADN, alors que celles-ci sont peu atteintes par le rayonnement émis par le tritium sous forme HTO, en raison du faible parcours moyen de ce rayonnement. L'IRSN envisage donc de réaliser des expérimentations en milieu contrôlé pour étudier les effets de la rémanence du tritium à différentes échelles d'observation du vivant, en considérant les différentes formes de tritium dans la source d'exposition (eau tritiée, molécules organiques).

L'efficacité biologique relative (EBR) du rayonnement émis par le tritium n'a été étudiée que pour quelques espèces animales, principalement des mammifères, et essentiellement pour le tritium sous forme HTO. Les études disponibles à l'heure actuelle ont permis d'estimer des EBR inférieurs à 3 pour les espèces non humaines. Dans ces conditions, si l'on suppose que l'EBR varie entre 1 et 3 quelle que soit la forme du tritium dans la source d'exposition, l'incertitude (par rapport à un rayonnement gamma) sur les résultats de calcul de dose serait de moins d'un ordre de grandeur, ce qui est peu en regard des incertitudes plus importantes qui existent dans la chaîne de calcul dosimétrique et dans la détermination des effets biologiques et écologiques en résultant. Toutefois, l'IRSN observe qu'il n'existe pratiquement aucune donnée pour les expositions chroniques à l'eau tritiée et que les études relatives à l'EBR pour les formes organiques du tritium sont peu nombreuses pour les organismes non humains. Les espèces étudiées jusqu'à présent et leurs stades de vie sont peu diversifiés ; il en est de même pour les types d'effets biologiques explorés. La pertinence de la notion d'EBR pour les espèces non humaines, pour lesquelles les effets auxquels on s'intéresse sont de type déterministe, est actuellement mal connue. Pour toutes ces raisons, l'IRSN projette de mener des expériences en milieu contrôlé sur un nombre limité de modèles biologiques clefs dans la structure et le fonctionnement des écosystèmes aquatiques, pour acquérir des connaissances sur la sensibilité relative d'une exposition chronique au tritium sous différentes formes (HTO et molécules organiques marquées diverses) par rapport à une irradiation chronique gamma externe, en considérant des types d'effets pertinents d'un point de vue écologique (ex. survie, croissance, reproduction...).

Enfin, les données disponibles au sujet des effets toxiques du tritium sur les organismes non humains ne portent que sur des animaux et essentiellement la forme HTO. Certaines de ces données montrent que les débits de dose à partir desquels des effets biologiques ont été observés sur des invertébrés aquatiques sont significativement plus faibles que la valeur de 10 $\mu\text{Gy}/\text{h}$ habituellement considérée comme critère de protection des écosystèmes soumis à une irradiation chronique par des rayonnements gamma : il s'agit notamment d'effets cytogénétiques (aberrations chromosomiques) apparaissant chez un mollusque marin (*Mytilus edulis*) exposé au tritium à un débit de dose dépassant 1,3 $\mu\text{Gy}/\text{h}$, ainsi que d'effets sur le développement de *Daphnia magna* (micro-crustacé aquatique) observés à partir de 3 $\mu\text{Gy}/\text{h}$ et s'aggravant au fil des générations. Les mécanismes et les conséquences écologiques de ces effets biologiques sont méconnus et, même si les niveaux d'exposition observés actuellement dans l'environnement ne laissent pas présager de risque significatif pour ces organismes, l'IRSN prévoit de poursuivre des recherches visant à mieux connaître les effets toxiques du tritium, en privilégiant l'étude des invertébrés aquatiques. Les données scientifiques issues de ces recherches devraient permettre de modifier ou d'adapter, si nécessaire, le critère actuellement considéré pour la protection écologique vis-à-vis des rayonnements ionisants.