

Le tritium et l'environnement : sources, mesures et transferts

P. GUÉTAT¹, C. DOUCHE¹, J.C. HUBINOIS¹

(Manuscrit reçu le 1^{er} avril 2008, accepté le 22 juin 2008)

RÉSUMÉ Dans le cadre d'une réflexion sur l'impact environnemental et sanitaire du tritium, un séminaire a été organisé par les experts de l'article 31 du traité Euratom en novembre 2007 à Luxembourg. Son objectif était de préciser les axes de recherches et développement et de déterminer des points réglementaires qui devaient être revus compte tenu de l'évolution des connaissances. Cet article présente les informations relatives aux sources et stocks actuels de tritium, rappelle succinctement les différentes techniques de mesure utilisables en considérant l'ensemble des besoins d'analyses, et présente à grand traits les connaissances principales et les incertitudes associées sur les transferts entre compartiments de la biosphère en conditions normales et accidentelles.

ABSTRACT Tritium and the environment: sources, measurement and transfer.

Within the framework of a seminar on environmental and health impact of tritium organized by article 31 Euratom expert group in November 2007, it was expected to make a point on tritium knowledge and to define R&D and regulatory axes. This document presents the different sources of tritium, different methods of measurement associated to tritium processes and survey, transfer in the biosphere compartments in normal and accidental conditions. It suggests some R&D subjects and discusses some regulatory aspects.

Keywords: Tritium / environment / sources / measurement / regulation

1. Introduction

Avec le passage d'une nouvelle étape dans la série des prototypes devant conduire à la réalisation d'un réacteur à fusion, les aspects technologiques et environnementaux prennent de l'importance, en raison en particulier de l'utilisation de quantités significatives de tritium. Il est intéressant de faire un point général de la situation, pour situer les réacteurs à fusion par rapport aux autres sources existantes de tritium ; d'identifier des axes de recherches et développements permettant de mieux apprécier l'impact de cette filière sur son environnement, et de voir si le cadre réglementaire existant est bien adapté ou exige des améliorations.

¹ CEA, Centre de Valduc, 21120 Is-sur-Tille, France.

2. Sources

En préalable, on rappellera que les quantités de tritium sont exprimées soit en masse (grammes ou kg), soit en activité (Becquerel et multiples allant jusqu'au petabecquerel 10^{15} Bq). Un gramme de tritium a une activité de $3,58 \times 10^{14}$ Bq (0,358 PBq ou 358 TBq).

Les exploitants utilisent encore assez fréquemment le Curie en raison d'une conversion facile (1 g correspond à environ 10 000 Ci).

Le tritium ^3H présent dans l'environnement a deux origines, naturelle et anthropique.

2.1. Le tritium naturel

Il est produit principalement par l'interaction de neutrons cosmiques sur l'azote, l'oxygène et l'argon. Environ 99 % du tritium est incorporé dans l'eau et suit le cycle de l'eau de la haute atmosphère jusqu'à la mer. L'UNSCEAR (2000) évalue l'inventaire naturel global à environ $1,3 \times 10^{18}$ Bq (1300 PBq ou 3,5 kilogrammes).

La production annuelle est de l'ordre de 50 à 70 PBq (0,15 à 0,20 kilogramme).

2.2. Le tritium d'origine anthropogénique

Il provient de plusieurs sources :

Les émissions des **essais nucléaires atmosphériques** réalisés entre 1945 à 1963 constituent de très loin la source principale de tritium. Ces essais ont libéré environ 560 kilogrammes de tritium (respectivement 420 kilogrammes dans l'hémisphère nord et 140 kilogrammes dans l'hémisphère sud). Compte tenu de la décroissance radioactive du tritium, il reste en 2007 environ 40 kilogrammes de tritium, répartis pour 90 % en mer, 10 % dans les eaux continentales et environ 1 % dans l'atmosphère.

Avant les essais atmosphériques, les activités volumiques d'eau de pluie, de fleuves et d'océans étaient respectivement de $0,6 \text{ Bq L}^{-1}$, $0,3\text{-}0,8 \text{ Bq L}^{-1}$, et $<0,1 \text{ Bq L}^{-1}$. L'activité de l'eau de pluie a atteint 150 Bq L^{-1} en 1963 dans l'hémisphère du nord et a décliné depuis jusqu'à environ 1 Bq L^{-1} actuellement.

Les **installations de traitement et recyclage de combustibles irradiés** constituent la deuxième source. La plupart des installations se situent en bord de mer et les rejets sont essentiellement liquides. L'usine de la Hague (F) rejette de l'ordre de 10 PBq an^{-1} (30 g) pour 1600 t de matière (Carmin, 2005), et celle de Sellafield (UK) environ $2 \text{ à } 3 \text{ PBq an}^{-1}$ (8 g).

TABLEAU I
Concentrations en tritium dans les eaux naturelles (Bq L⁻¹).
Tritium concentrations in natural waters (Bq L⁻¹).

Eaux de surface	0,1-0,9
Eau de pluie (avant essais)	0,6
Eau de pluie (1963)	150
Eau de pluie (1990)	2
Aquifère	1-10
Rivières	<10
Mer du nord	0,3
Océans : surface	0,1
Profondeur -1000 m	0,005

Ces sources ont une incidence mineure sur l'atmosphère avec des rejets atmosphériques respectivement de 0,07 et 0,2 PBq an⁻¹.

Les **réacteurs nucléaires** sont aussi des sources d'émission de tritium, qu'il convient de détailler selon le type de réacteur.

Les réacteurs à eau lourde (HWR) ont une production significative de tritium à partir du deutérium. Cette spécificité explique que leurs rejets soient nettement plus élevés que ceux des autres réacteurs. Ils sont de l'ordre de 100 à 1000 TBq an⁻¹ et les rejets liquides sont également d'environ de 100 à 500 TBq an⁻¹ (environ 1g).

Dans un réacteur à eau pressurisée (PWR) (Jones, 2008), le tritium est produit principalement par capture de neutrons par le bore ¹⁰B. L'acide borique est ajouté dans l'eau du circuit primaire comme absorbeur de neutrons soluble pour le contrôle de la réactivité, et le bore (enrichi en ¹⁰B) est employé dans les assemblages de combustibles comme poison consommable. 90 % du tritium présent dans le circuit primaire proviennent de l'acide borique. Les autres 10 % sont produits par fission ternaire, par consommation du ¹⁰B des assemblages, par capture de neutrons par du ⁶Li, et par activation du deutérium ²H. La capture de neutrons par du ⁷Li est une source mineure de tritium.

L'utilisation du bore a augmenté au cours du temps : dans les premières conceptions de cœurs de réacteurs d'autres poisons neutroniques étaient utilisés. La durée d'utilisation du combustible a généralement été prolongée de 18 mois à 24 mois, ce qui exige une concentration initiale plus élevée en bore dans le circuit primaire du réacteur ; enfin l'augmentation de puissance des cœurs nécessite également plus de bore. Il en résulte une augmentation de la production de tritium.

Les rejets atmosphériques de REP sont de l'ordre de 0,3 à 3 TBq an⁻¹ aux États-Unis. Les rejets liquides sont plus importants. Ils ont augmenté de 10 TBq an⁻¹ jusqu'à 20 TBq an⁻¹ entre 1973 et 2006. L'UNSCEAR (2000) fournit la même gamme de valeurs.

La production de tritium des réacteurs à eau bouillante (BWR) est sensiblement inférieure à celle des REP en raison de l'absence d'acide borique dans le liquide caloporteur primaire. Les rejets sont d'environ 1 TBq an⁻¹ pour les effluents atmosphériques et se situent au même niveau pour les effluents liquides.

Les réacteurs refroidis au gaz (GCR) ont des rejets liquides dont l'activité en tritium est voisine des réacteurs à eau lourde et des rejets atmosphériques d'activité légèrement supérieure à celle des REP.

Sources industrielles et de petits utilisateurs

Deux types importants d'utilisation industrielle du tritium doivent être mentionnés. L'une est la production et l'utilisation de molécules marquées pour des applications médicales ou dans le cadre de recherches scientifiques. Les installations d'Amersham, en Grande-Bretagne, qui rejetaient 0,5 PBq an⁻¹ d'effluents atmosphériques avant 2000 rejettent aujourd'hui 0,1 PBq an⁻¹.

Les rejets liquides de composés organiques dissous « ont marqué » la chaîne alimentaire de l'environnement estuarien avec une dilution moindre que prévue (Wallis, 2005). Cette situation est à l'origine des débats actuels sur l'évaluation des transferts et des impacts des molécules organiques tritiées.

La seconde utilisation industrielle est la production au Canada d'objets luminescents contenant du tritium gaz. Les rejets sont passés progressivement de 1,6 PBq an⁻¹ en 2000 à 0,1 PBq de HTO et à 0,3 PBq de HT (Mihok, 2007) en 2006. Ces objets luminescents semblent être à l'origine du marquage des eaux dans les décharges américaines (Mutch et Mahony, 2008) ; des études récentes révèlent la présence de tritium dans leurs nappes phréatiques à un niveau dépassant le standard de qualité retenu par la plupart des états, qui est de 370 Bq L⁻¹ (20 000 pCi L⁻¹). Une plaque luminescente « EXIT » peut contenir de 0,1 à 0,5 TBq.

Les petits utilisateurs des molécules marquées – hôpitaux, laboratoires pharmaceutiques... – produisent peu de rejets. À titre d'exemple, les stocks de déchets sont évalués en France à 0,5 PBq. La majeure partie de la production actuelle de déchets peut être incinérée ou éliminée en centre de stockage de surface.

2.3. Sources de tritium dans le futur

Les réacteurs à fusion utiliseront et produiront du tritium en grandes quantités. Le *Joint European Torus* (JET) a utilisé au total 20 g de tritium ; ITER en emploiera 1.5 kg an^{-1} . Les autorisations de rejets d'ITER ne sont pas actuellement arrêtées. Il ne serait pas surprenant qu'elles soient de l'ordre de quelques grammes par an. À titre d'exhaustivité, les lasers de puissance, comme le laser MegaJoule en France, devraient utiliser et rejeter quelques milligrammes par an.

2.4. Déchets

Entre 1967 et 1982 environ 20 PBq ont été éliminés par déversement en mer de déchets tritiés. En France, la capacité radiologique du Centre de stockage de faible et moyenne activité FMA de l'Aube est 4 PBq, mais il est très difficile de remplir l'ensemble des conditions d'acceptation pour les déchets contenant du tritium. En pratique les déchets contenant uniquement du tritium ne sont pas envoyés au CS-FMA. Le Centre de stockage pour les déchets de très faible activité (TFA) a également des critères d'acceptation très contraignants.

Certains déchets contenant des radionucléides à vie longue (dits de type B), devront être gérés en stockage géologique ou en sub-surface. Ils peuvent cependant contenir une quantité significative de tritium. C'est le cas du graphite en France, où 20 000 t contiennent en 2007 au plus 5 PBq. Il devrait normalement pouvoir être éliminé en stockage de sub-surface. C'est également le cas des coques et embouts des gaines de combustibles qui seront éliminés en stockage géologique et peuvent contenir 20 TBq t^{-1} . Le dégazage de ces déchets apparaît très faible, dans une gamme de 10^{-6} à 10^{-7} par an. Il en va de même pour les barres de contrôle en carbure de bore (B_4C) des réacteurs.

Les déchets relatifs à la production et à la purification du tritium en France constituent en 2007 un entreposage d'environ 5 PBq. Une politique de traitement systématique est appliquée, avec fusion des métaux issus de la première barrière de procédé, étuvage à la vapeur des déchets organiques à fort taux de dégazage et reprise des déchets anciens. Le taux de dégazage moyen de l'entreposage est de l'ordre de 1 % par an en moyenne et dépend nettement de la température suivant une loi en $e^{-6096/T}$ (avec T en K), soit d'un ordre de grandeur entre -5 °C et 25 °C (Batifol *et al.*, 2008).

2.5. Bilans et perspectives

La figure 1 donne une vue d'ensemble des rejets autorisés du tritium pour les rejets atmosphériques et liquides en France. On y a ajouté les valeurs de rejets autorisés

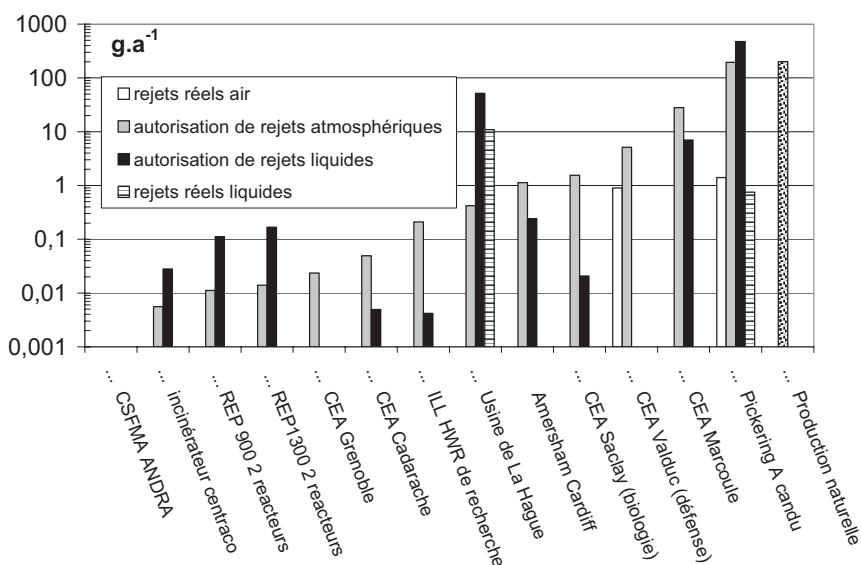


Figure 1 – Les différents niveaux d'autorisations de rejets en tritium [gramme].
Different levels for authorized releases of tritium [gramme].

d'un réacteur Candu canadien disposant d'une autorisation ancienne et la production naturelle. Pour les autorisations les plus élevées, sont également indiquées les valeurs moyennes des rejets réels des dernières années (barres blanches).

La figure 2 présente une évaluation de la production de déchets contenant du tritium en France dans les 50 prochaines années.

Cette augmentation justifie la demande de la loi programme n° 2006-739 du 28 juin 2006 au sujet de la gestion durable des déchets radioactifs et des matières : « il est institué un Programme de recherche et d'études dont les objectifs sont les suivants : ... La mise au point pour 2008 de solutions d'entreposage de déchets contenant du tritium permettant la réduction de leur radioactivité avant stockage en surface ou à faible profondeur ».

3. Mesures

Le tritium peut exister sous des formes physico-chimiques très différentes ; sous forme de gaz, ce peut être le dihydrogène H₂, la vapeur d'eau H₂O ou le méthane CH₄. L'hydrogène peut être pur avec des isotopies multiples (¹H, ²H, ³H) ou

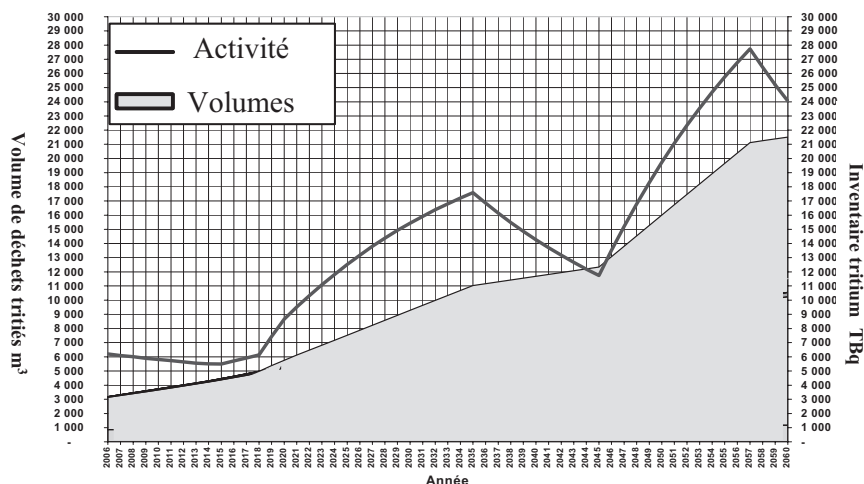


Figure 2 – Activité et volumes cumulés de déchets tritiés dans les 50 années à venir.
 Prospective cumulated volumes and tritium activity of waste in the next 50 years.

contenir des impuretés, au moins de l'hélium ^3He . Sous forme liquide, on le trouve souvent dans des molécules d'eau, mais il peut également être inclus dans des composés organiques, des cocktails de scintillants, des solvants ou des huiles. Le tritium peut également être sous forme solide : dans un métal dans lequel il a diffusé, ou dans des composés organiques mais aussi sous forme de poudre d'hydrure (d'uranium, d'hafnium, de titane, de zirconium, de palladium, ...) qui sont ou peuvent être employés comme réservoir solide d'hydrogène. Il peut enfin s'agir d'eau adsorbée sur de la zéolithe.

Dans les installations d'extraction et de purification de tritium, les mesures doivent couvrir toute la gamme d'activité allant de traces dans des eaux naturelles de surface ($0,1 \text{ Bq kg}^{-1}$) jusqu'au tritium pur ($3,58 \times 10^{17} \text{ Bq kg}^{-1}$).

Les mesures de tritium ont différents objectifs : inventaires, composition (isotopies et impuretés), évaluation des rejets, caractérisation des déchets (activité total et dégazage), et contrôle de l'environnement pour les rejets normaux ou accidentels.

Les techniques de mesures sont très différentes selon le niveau de l'activité et selon l'objectif de la mesure qui peut être une mesure en ligne (contrôle de qualité ou alarme de sûreté) ou *a posteriori*.

La désintégration de tritium produit un électron, un atome de ^3He et libère 325 mW g^{-1} .

Ces trois types d'informations radiologiques sont utilisés dans les appareils de mesure en fonction de la forme physique et du niveau de l'activité. À cela s'ajoute l'utilisation de propriétés liées à la masse et à la spectrométrie.

3.1. Mesures de la matière

L'inventaire de gaz peut être obtenu par calorimétrie ou microcalorimétrie, avec une mesure de flux thermique (énergie libérée) dans un calorimètre isotherme. Le niveau de détection en tritium est de l'ordre de 10 nW mL^{-1} (le volume étant celui de l'échantillon). La technique de scintillation solide peut également être utilisée. Elle met en œuvre un cristal qui transforme l'excitation électronique en une émission de photon.

La spectrométrie de masse est utilisée pour mesurer l'isotopie et les impuretés. Des molécules sont introduites dans une source d'ions. Ces ions sont accélérés, filtrés dans un spectromètre de masse (les trajectoires dépendent du rapport masse/charge des ions) puis collectés dans une cage de Faraday.

La micro-chromatographie en phase gazeuse avec colonne cryogénique est également une méthode permettant de distinguer les différentes espèces d'un gaz en s'appuyant sur leurs caractéristiques de perméation.

Ces deux dernières techniques peuvent être couplées.

La spectrométrie Raman est encore en développement. Elle est basée sur la mesure de la fréquence de la lumière diffuse quand une source lumineuse monochromatique (laser) interagit avec des molécules (polyatomiques). Cette technique, permet l'analyse chimique qualitative et quantitative de gaz contenant du tritium, même pour des mélanges (HT, DT et HD). L'enjeu est aujourd'hui la détermination de 0,5 % de HD dans 99,5 % de ($\text{H}_2 + \text{D}_2$).

Intégré en boîte à gants, l'ICP-AES permet la détermination des impuretés métalliques dissoutes dans les eaux tritiées dans le but d'orienter leur traitement. Cette technique permet la quantification précise de valeurs aussi basses que 0,1 mg/L d'impuretés (Fe, Ni, Cr, Al, S...) dans les eaux.

3.2. Mesure pour déchets, effluents et environnement

Les mesures de déchets sont, à l'exception de la mesure d'hélium-3, des mesures indirectes impliquant des facteurs correctifs, mesures d'activité surfacique par frottis ou de dégazage.

La méthode ^3He est employée au centre CEA de Valduc pour mesurer l'inventaire tritium de fûts de déchets. La limite de détection est de l'ordre de quelques GBq par fût pour des mesures de type industriel.

Pour les émissions gazeuses, dégazage ou rejets, on utilise la mesure de courant électrique (les électrons) dans une chambre d'ionisation ($>40 \text{ Bq L}^{-1}$ pour une chambre de 1 L). Ce courant est également employé et amplifié dans les compteurs proportionnels qui utilisent un gaz d'entraînement mais fournissent une bien meilleure information ($>3 \text{ Bq L}^{-1}$ pour 1,3 L et 1 mn). La forme chimique (HT, HTO) n'est cependant pas accessible par ces méthodes. À échelle industrielle, le dégazage des fûts est mesurable lorsqu'il dépasse $0,5 \text{ MBq j}^{-1}$.

La technique de scintillation liquide est également souvent employée pour des mesures de gaz, après transformation en eau liquide. Pour obtenir de l'eau, de l'air est prélevé en continu et transféré pour bullage dans un ensemble de 2 autres flacons (ou plus) d'eau pure selon un débit donné. Le tritium sous la forme de HTO est ainsi piégé. Le tritium restant (principalement HT) est alors oxydé (technique thermique ou chimique) et envoyé dans un deuxième ensemble de flacons. L'eau est enfin analysée après un temps de mise en charge.

L'eau contenant du tritium est ensuite ajoutée à un cocktail de scintillants qui permet de transformer le rayonnement β en photons. Les photons sont collectés et mesurés hors du liquide. Cette technique a l'avantage de mesurer séparément le HT et le HTO. Néanmoins, elle peut être très sensible à des artefacts comme la présence d'autre gaz radioactif (^{14}C , Rn), la chimioluminescence, l'électricité statique. Il est facile de mesurer 10 Bq L^{-1} et il est toujours possible de diluer des activités plus élevées si nécessaire.

La conservation et la préparation des échantillons, en particulier biologiques, sont des éléments très importants de la mesure, impliquant distillations multiples et combustion. Il est important de conserver à l'esprit que l'air contient naturellement quelques dizaines de grammes de vapeur d'eau, et que le tritium (gaz ou eau) est très mobile et peut être source de contamination d'échantillons à échantillons, directement ou indirectement.

On retrouve la mesure d'hélium-3 pour les très bas niveaux des eaux. Des valeurs aussi basses que $0,01 \text{ Bq L}^{-1}$ peuvent être mesurées par spectrométrie en mesurant l' ^3He après plusieurs mois d'attente.

La plupart des moyens de mesures peuvent être améliorés et font l'objet de recherches et développements. Ces études devraient s'intensifier dans le contexte du développement de la filière fusion.

4. Transfert de tritium dans l'environnement

L'hydrogène est l'un des éléments majeurs de la vie et l'eau joue un rôle important dans la régulation des conditions des milieux. De nombreux mécanismes biologiques complexes d'interaction et contrôles existent par ailleurs pour entretenir la vie et s'opposent aux fluctuations de l'environnement naturel. Selon le point de vue où l'on se place, il apparaît soit une assez grande stabilité des conditions soit une grande complexité avec un nombre important de phénomènes d'actions opposées.

Les modèles relatifs à l'hydrogène et l'eau reflètent cet état des choses et appartiennent à deux catégories : les uns concernent l'impact des rejets en fonctionnement normal plus ou moins réguliers au cours de l'année, avec des relations assez simples entre les compartiments (air, sol, plantes, animaux, homme), les autres concernent des rejets de courte durée pour lesquels il est nécessaire de disposer de nombreuses informations et d'équations élaborées.

4.1. Rejets continus de fonctionnement (normaux)

L'approche la plus complète est très bien explicitée dans deux documents de l'AIEA qui ont été actualisés dans le programme EMRASS et seront prochainement édités en 2008 : le TRS 364 et le document technique associé (Tecdoc).

Le modèle « de l'équilibre isotopique » est traditionnellement utilisé pour le tritium, et l'on considère donc que le rapport $^3\text{H}/^1\text{H}$ reste constant d'un compartiment à un autre. À rejet constant un certain équilibre s'établit entre l'air, la pluie, les plantes, le sol, et les animaux, les apports d'eau de pluies et d'irrigation compensant l'évapotranspiration des plantes.

Les auteurs préfèrent généralement utiliser le rapport des concentrations en tritium des eaux entre les différents compartiments. Le tritium se trouve dans l'eau libre des organismes, ou incorporé dans des molécules organiques. Suivant les liaisons chimiques considérées, il est soit facilement échangeable (E OBT *exchangeable bound tritium*, extrait de la matière sèche par lavage multiple à l'eau pure), soit non échangeable (NE OBT). Il est alors récupérable par combustion de la matière organique et se retrouve dans l'eau générée avec l'oxygène de l'air.

Les masses de matière sèche, d'eau libre, d'eau de combustion, et la concentration dans ces différentes eaux, sont toutes accessibles à la mesure.

Dans le passé, l'approche très simple utilisée consistait à calculer l'activité de la vapeur d'eau de l'air en un point donné et de supposer que n'importe quelle eau

du sol, des plantes, ou des animaux avait la même activité (équilibre isotopique). Le calcul de dose se limitait au produit de $1,3 \text{ L j}^{-1}$ d'eau consommée quotidiennement par l'activité volumique de la vapeur d'eau et par le facteur de dose par unité incorporée ($2 \times 10^{-11} \text{ Sv Bq}^{-1}$). Cette approche donne un bon ordre de grandeur.

Compte tenu des quantités d'eau absorbée par chacune des trois voies d'atteinte : inhalation, passage transcutanée et ingestion, la voie principale d'exposition est nettement l'ingestion.

Pour affiner le calcul, il est nécessaire de distinguer « eau libre » et « matière organique » et d'établir la correspondance entre activité de la matière organique et activités des eaux mesurées. On définit ainsi un facteur d'« équivalent eau » pour la matière organique qui peut être déduit des teneurs en hydrogène des lipides (7 %), protéines (12 %) et glucides (6,2 %). Pour la plupart des plantes, cette valeur est de l'ordre de 0,5 à 0,6.

Le deuxième aspect important est le fait qu'en raison de la différence de masse, il y a un facteur de discrimination entre ^1H et ^3H dans les différents transferts et les transformations biochimiques. À partir des résultats de mesures, ce facteur est de l'ordre de 0,5.

En pratique, il est encore possible d'effectuer une évaluation simple mais plus réaliste des transferts, avec l'équation suivante :

$$C_{\text{plante.fw}}^{\text{total}} = [\Phi_r + 0,3 (1 - \Phi_r)] [(1 - H_{\text{plante}}) W_{\text{eq}} D_p + H_{\text{plante}}] C_{\text{air.w}}$$

avec Φ_r : humidité relative de l'air, H_{plante} : proportion massique d'eau dans la plante, W_{eq} équivalent eau de la matière sèche, D_p : facteur de discrimination isotopique entre ^3H et ^1H .

Exemple : pour une humidité relative de l'air de 70 %, une teneur en eau dans un légume vert de 80 % et dans du blé de 20 %, un W_{eq} de 0,6 et un D_p de 0,5, la relation donnerait respectivement une activité pour le légume vert égale à $2/3$ de la concentration de la vapeur d'eau de l'air et une activité du blé égale à $1/3$. Le tritium organique lié représente 7 % du tritium total pour le légume vert et 54 % dans le cas du blé. En tenant compte du fait que le facteur de dose par unité incorporée pour le tritium organique est 2,1 fois supérieur à celui de l'eau tritiée, on trouve que l'exposition ainsi calculée est d'environ 60 % de celle calculée avec le modèle historique.

Dans le cas de rejets de tritium gaz (HT), le dépôt au sol est environ 10 fois plus faible que le dépôt de vapeur d'eau et il n'y a ni dépôt par la pluie ni transfert direct

de l'air aux feuilles. Le dépôt (HT) est rapidement transformé dans le sol en eau HTO par les microorganismes. Commence alors les transferts précédemment mentionnés de l'eau tritiée. Sur ces bases qui sont confirmées par des expériences de terrain, l'impact de HT est de l'ordre de quelques pourcents de l'impact de l'eau tritiée HTO à activités rejetées égales.

Dans le cas de particules tritiées et tritiures métalliques, les coefficients de dose par unité inhalée peuvent être jusqu'à 30 fois supérieurs à celui de l'eau tritiée, selon la nature et la taille des particules. Cependant, les rejets de poussières en fonctionnement normal sont très faibles comparés aux rejets d'eau tritiée, en raison de l'utilisation de filtres de très haute efficacité, comme cela est illustré dans le cas d'ITER (Maubert et Di Pace, 2008).

En réalité, dans l'analyse des données de surveillance, il y a des fluctuations autour de ces valeurs moyennes dans les différents compartiments de l'environnement en fonction des variations de direction de vent, des variations de débits de rejet et des périodes de résidence de l'eau dans les différents compartiments. L'eau tritiée libre a une période biologique de quelques heures dans la plante. Au contraire l'OBT non échangeable se comporte comme un intégrateur sur toute la durée de croissance de l'échantillon mesuré. Le sol aura besoin de plusieurs mois pour renouveler son eau. Ces éléments qui sont pondérés dans le cas de rejets plus ou moins continus sont beaucoup plus importants dans le cas d'un rejet accidentel.

4.2. Rejets de courte durée

En cas de rejet de courte durée ou accidentel, les voies d'exposition apparaissent successivement avec tout d'abord l'inhalation et dans une moindre mesure la contamination transcutanée lors du passage du nuage ; puis vient l'ingestion de légumes contaminés par la vapeur d'eau tritiée de l'air consommés dans les premiers jours après le rejet. Le tritium organiquement lié produit pendant ces premiers jours est fixé dans les plantes jusqu'à leur récolte qui s'étale sur plusieurs semaines. Les cultures en place fournissent ainsi l'exposition principale. Enfin la contamination des végétaux à partir de l'eau du sol complète l'exposition jusqu'à l'hiver suivant, au cours duquel il y a décontamination des sols par lixiviation. Certains organes comestibles comme les grains de céréales ou les pommes de terre sont stockés, ce qui diffère encore leur impact radiologique de quelques mois.

Les phénomènes prépondérants pour l'eau tritiée sont : l'incorporation de la vapeur d'eau de l'air par les feuilles, les dépôts au sol (sec et par la pluie) à partir de l'air contaminé, la transformation de HTO en OBT dans les feuilles, la translocation des feuilles aux fruits, aux racines et tubercules, et enfin le temps de résidence de l'eau dans le sol.

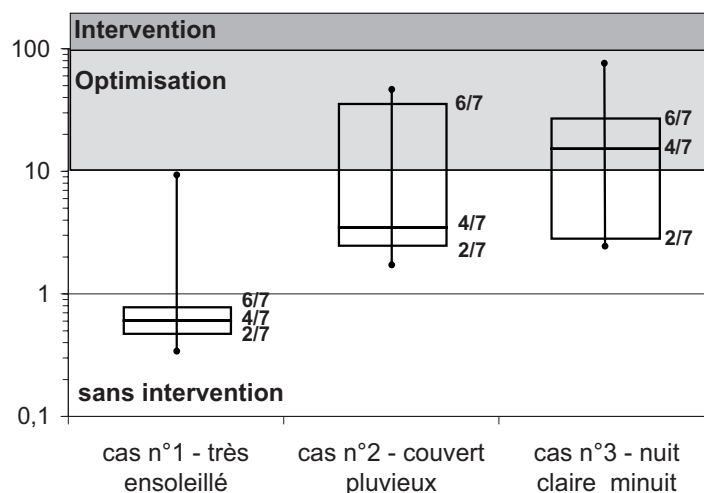


Figure 3 – Distribution des résultats de calcul de dose efficace pour un rejet de 10 g de tritium à la distance de 1 km, dans 3 types de conditions météorologiques.

Distribution of total dose for a 10 g tritium release under three different meteorological conditions at 1 km.

Tous ces mécanismes sont modélisés de manière plus ou moins approfondie mais il reste un réel besoin de synthétiser les différentes approches mathématiques et d'harmoniser et/ou compléter les connaissances comme on peut le voir dans les paragraphes suivants (Guétat et Patryl, 2008).

Dans le cadre du programme EMRAS de l'AIEA, huit équipes ont réalisé une analyse des conséquences d'un rejet atmosphérique de courte durée de tritium par (IAEA, 2007) pour un rejet de 10 g de tritium se produisant mi-juin, quand les plantes ont un taux de croissance maximal. Trois types de conditions météorologiques standard ont été évalués : cas n° 1 = jour ensoleillé en conditions atmosphériques instables et vent de 2 m s^{-1} – cas n° 2 = jour de pluie en conditions atmosphériques neutres, vent de 5 m s^{-1} et pluie de 15 millimètres – cas n° 3 = nuit claire en conditions stables, vent de 2 m s^{-1} .

En considérant l'ensemble des voies d'exposition et les trois conditions météorologiques on peut voir sur la figure 3 qu'il y a une grande variabilité des résultats, ce qui mènerait, selon l'évaluation, à une optimisation des contre-mesures à mettre en place ou au contraire à une absence complète d'intervention (ICRP, 1991).

Comme dans des travaux précédents (Barry *et al.*, 1999 ; Galleriu *et al.*, 1995), la distribution des résultats varie selon les scénarios et les modèles utilisés. Les différences pour les cas de pluie et de nuit atteignent un facteur 10 ; ceci est dû en

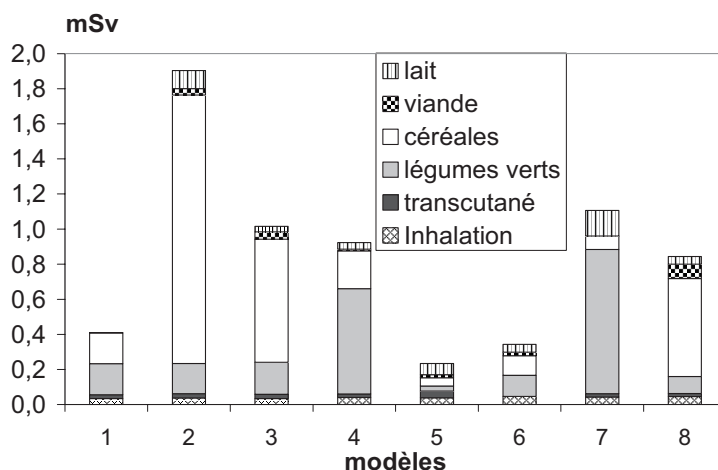


Figure 4 – Détails des expositions par voies d'atteinte (concentration de l'air normalisé).
Dose details by pathways (normalized air concentration).

partie aux modèles de dispersion atmosphériques mais surtout à la modélisation des transferts aux aliments.

Pour mieux cibler les incertitudes provenant de la modélisation spécifique du tritium, les résultats des calculs d'exposition ont été normalisés et rapportés à une même concentration de l'air (Fig. 4).

Dans tous les calculs, l'ingestion d'aliments constitue la principale contribution à la dose et l'ingestion de céréales et de légumes verts en représente la plus grande partie, leur importance relative étant variable selon le modèle utilisé. L'impact radiologique dû à l'ingestion des céréales est important : leur tritium se trouve sous forme d'OBT, et les céréales peuvent être stockés et consommés sur une période longue. Cependant, il est très peu probable que la totalité de la ration quotidienne de céréales (ici 430 g par jour) puisse être constituée uniquement de blé provenant du point au maximum de contamination en raison de la dilution dans le processus industriel de stockage des récoltes. En supposant que toutes les céréales proviennent d'un seul endroit, les modèles (de manière pessimiste) prédisent que les céréales contribuent entre 10 % et environ 80 % du total des expositions. Les céréales constituent clairement la source principale d'incertitude (surestimation) de ces évaluations d'exposition.

Pour évaluer l'impact d'un rejet de tritium, on doit non seulement connaître les caractéristiques de dispersion atmosphérique, mais on doit aussi tenir compte de paramètres influençant la photosynthèse et de paramètres agronomiques

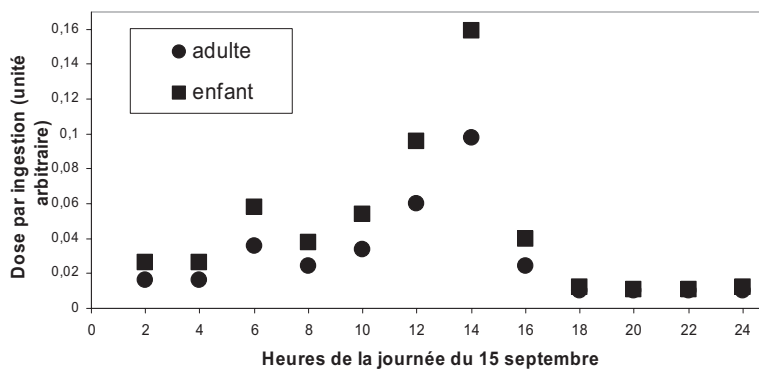


Figure 5 – Variation de l'exposition en fonction de l'heure d'occurrence d'un accident un jour de septembre (unité arbitraire).

Exposure variation versus hour of accident in a given day of September (arbitrary unit).

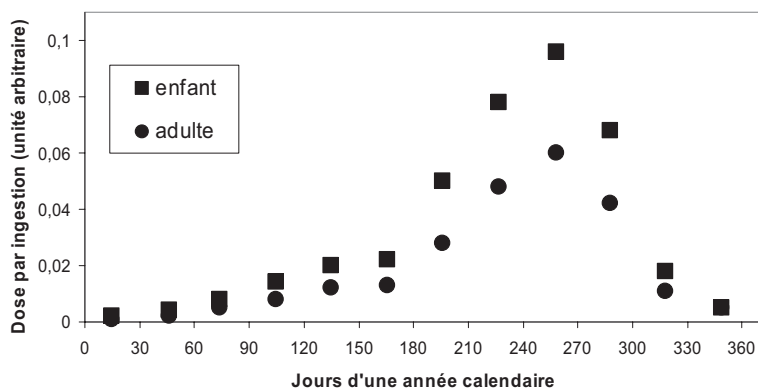


Figure 6 – Variation de l'exposition en fonction de la date d'occurrence d'un accident au cours d'une année.

Exposure variation versus date of accident in the year.

(caractéristiques des cultures et des techniques culturales). Les figures 5 et 6 présentent des résultats cités par (Galleriu *et al.*, 2008) pour illustrer les influences de l'heure de la journée et de la date précise de l'accident.

Dans ces deux études théoriques, l'auteur a dû fixer de nombreux paramètres. En réalité il y a peu de chance que l'on dispose de toutes ces informations instantanées pour avoir une confiance suffisante dans l'évaluation de l'impact d'un rejet accidentel.

Selon les intercomparaisons, l'influence de la pluie sur l'exposition totale est plus ou moins forte. Dans l'exercice EMRASS, cette influence est faible, mais dans d'autres études, des augmentations du dépôt, allant jusqu'à un facteur 7, sont possibles.

Dans l'exercice EMRASS, pour la plupart des modèles, la consommation de molécules marquées par le tritium (OBT), élaborées par les végétaux pendant le passage de l'air contaminé, constitue la source principale d'exposition. La voie de transfert air-plantes est dans la majorité des cas supérieure à la voie « sol-plantes ». Les modèles révèlent cependant de grandes disparités dans la contribution de l'eau du sol. Celle-ci dépend de 2 paramètres : les vitesses de dépôt et la vitesse de renouvellement de l'eau du sol arable. Cet exercice confirme qu'un rejet de tritium a un impact qui, du fait de la contamination du sol, se manifeste sur quelques mois (une saison agricole) et qu'en conséquence les calculs d'incorporation doivent être intégrés sur cette durée.

Cet exercice prouve également qu'il est nécessaire de calculer pour les cultures industrielles (blé, maïs, betteraves...), une activité moyenne à l'échelle de une à quelques parcelles (et non pas en un point) et d'être très précis sur la nature des produits consommés (blé, maïs et riz sont tous des céréales) et de leur teneur en matière sèche (la farine et le pain sont du blé). Sans cette précision, des erreurs d'un facteur 10 peuvent résulter d'un malentendu sur les données.

Les prévisions des modèles restent aujourd'hui fortement incertaines et les différences entre les modèles importantes. En particulier les connaissances sont insuffisantes en ce qui concerne la production d'OBT pendant la nuit, la dynamique des dépôts et des déplacements d'eau dans le sol, ainsi que la fraction de HTO dans les feuilles venant du sol. La figure 7 illustre ces incertitudes pour trois modèles fournissant l'évolution des concentrations en fonction du temps.

Un autre exercice du programme EMRASS concernait une contamination expérimentale d'une culture de soja. L'évolution mesurée du taux d'incorporation de HTO en OBT entre la floraison et la récolte est présentée dans la figure 8. La variation du taux d'incorporation atteint un facteur 1000. IL est indispensable d'utiliser de telles données agronomiques pour améliorer la précision des évaluations.

D'autres informations intéressantes sont à mentionner : en absence d'intervention, la dose intégrée par les enfants en bas âge est sensiblement identique à celle des adultes. Les activités massiques des produits animaux sont inférieures à celles des végétaux.

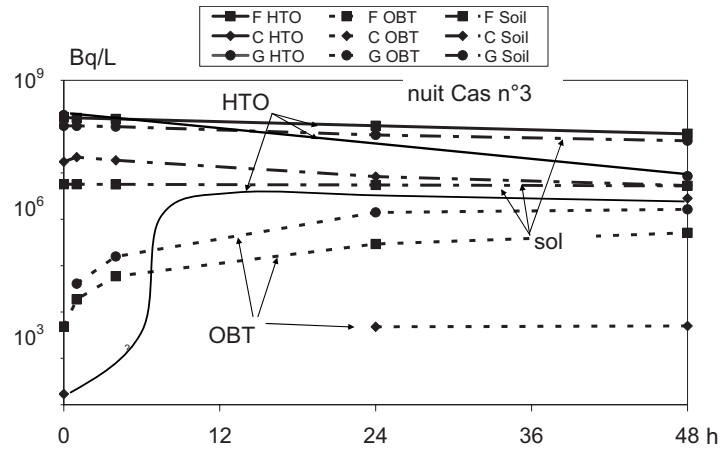


Figure 7 – Concentration en tritium pendant les deux premiers jours dans le cas d'une contamination à minuit, pour 3 modèles.
Tritium concentration during the first 2 days in the case of a midnight contamination, for 3 models.

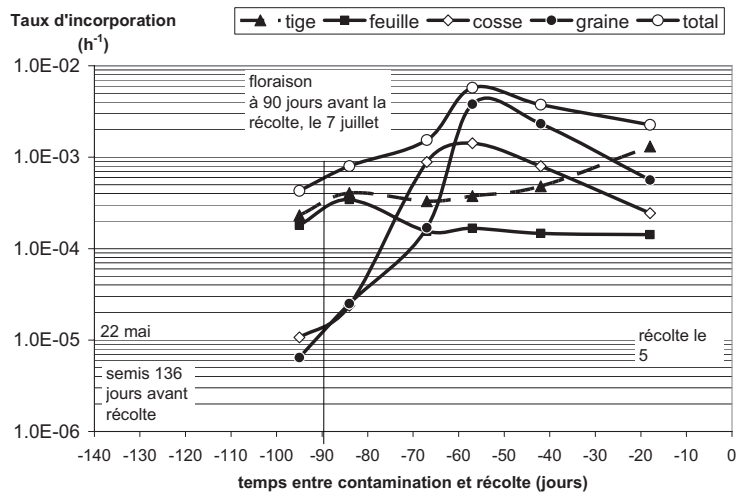


Figure 8 – Incorporation d'OBT à la récolte en fonction de l'instant de la contamination.
OBT incorporation at harvest versus time of contamination.

Pour un rejet de HT, l'impact est de l'ordre de 1 % à 3 % de celui d'un rejet d'HTO de même activité. Comme pour les rejets continus, ceci s'explique par la quasi-absence de contamination air-plantes et à une vitesse de dépôt moindre (environ d'un facteur 20) (Davis et Galeriu, 1995).

Pour les particules, l'importance des mécanismes en jeu dans l'environnement devrait être dépendant de chaque hydrure ou matériau tritié. Si l'on dispose d'informations sur la voie inhalation (Maubert et Di Pace, 2008), le comportement du tritium entre particules et végétaux, puis animaux et l'absorption par voie digestive apparaissent mal connus. L'usage, dans le domaine de la sûreté, est de considérer des situations d'incendies avec libération total du tritium sous forme de vapeur d'eau. Cette approche correspond à la voie de libération du tritium la plus plausible sachant par ailleurs que les mises en suspension de poudre sont généralement inférieures à 1 % des inventaires. On peut ainsi supposé que les scénarios retenus enveloppent le cas de mises en suspension de poudres, cependant cela reste à valider.

4.3. Aspects réglementaires relatif au tritium

Le tritium est un émetteur β de faible radiotoxicité, ayant une énergie moyenne par désintégration de 5,7 keV (bien plus faible que les émetteurs $\beta\gamma$ de référence ^{60}Co , ^{90}Sr et ^{137}Cs ayant des énergies de l'ordre de 1 MeV), mais il peut être assez facilement mesuré dès lors qu'il est isolé.

Dans la plupart des documents techniques basés sur l'impact radiologique, les limites fixées ou proposées pour le tritium sont beaucoup plus élevées que pour d'autres radionucléides usuels. C'est le cas de la directive européenne relative à la radioprotection (EC, 1996), ou la norme de l'Organisation mondiale de la santé pour l'eau potable (OMS, 2004).

Mais le plus souvent, les valeurs réglementaires se réfèrent à des groupes de radionucléides ou à des types d'émission (par exemple les émetteurs $\beta\gamma$) sans tenir compte de la radiotoxicité des éléments. Dans ce type de documents, le tritium est généralement assimilé à d'autres nucléides et par simplification se trouve ainsi pénalisé d'un facteur 10 voire souvent 100.

C'est le cas pour la limite d'activité surfacique de la réglementation du transport, et ce pourrait être également le cas pour la limite de commercialisation des produits alimentaires après accident. Nous développerons ici ce dernier point car il n'a pas encore de caractère réglementaire.

La Commission internationale de radioprotection (ICRP, 1991) retient comme référence un niveau de dose de 10 mSv en un an pour des personnes vivant en autarcie. La commission du Codex alimentarius considère de son côté une dose de

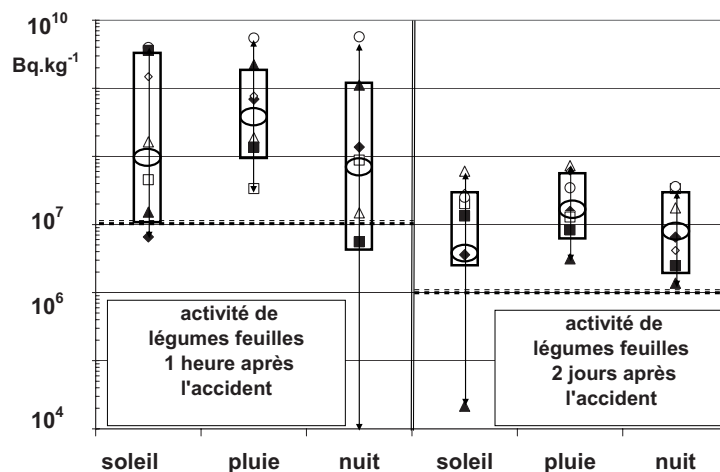


Figure 9 – Activités des végétaux à 1 h et 48 h correspondant au critère de dose retenu pour l'établissement des limites de commercialisation (1 mSv).

Activities of vegetable at 1 h and 48 h corresponding to exposure criteria used to establish food trade limits.

1 mSv pendant une année après accident, en retenant une consommation de 650 kg an^{-1} et 10 % de produit d'origine locale (Alinorm, 2006a) ce qui reste cohérent avec l'approche de la CIPR. Cette commission a également adoptée (Alinorm, 2006b) une valeur pour la commercialisation de produits alimentaires de 10^3 Bq kg^{-1} pour les produits pour bébés et de 10^4 Bq kg^{-1} pour les autres produits. On note que les doses correspondantes sont évaluées respectivement à $2 \text{ }\mu\text{Sv}$ et à $20 \text{ }\mu\text{Sv}$, et non 1 mSv comme pour les autres radionucléides.

Dans le scénario accidentel d'EMRASS, les modélisateurs ont calculé des concentrations dans les légumes à 1 h et à 48 h après rejet avec les hypothèses de dose et de consommation du Codex (Fig. 9). Deux résultats sont à rejeter, l'un dans le cas nocturne (n° 3) pour un modèle qui ne prend pas en compte l'incorporation du tritium pendant la nuit, mais considère seulement la contamination à partir du sol au matin suivant, l'autre pour le cas diurne ensoleillé (n° 1) pour la valeur calculée à 48 h, le modèle ne traitant pas de la contamination du végétal par l'eau tritiée provenant du sol.

Toutes les valeurs de concentration données par les modèles se situent entre 5×10^6 et $5 \times 10^9 \text{ Bq kg}^{-1}$ une heure après l'accident et entre 2×10^6 et $1 \times 10^8 \text{ Bq kg}^{-1}$ à 48 h, pour un légume feuille frais. Ces valeurs sont indépendantes des conditions atmosphériques au moment du rejet. Elles peuvent être comparées aux recommandations de l'US-DOE 10^7 Bq kg^{-1} (US-DOE, 2006) ou aux niveaux

d'action des directives canadiennes (3×10^4 Bq kg⁻¹ pour le lait et 10^5 Bq kg⁻¹ sous la forme d'OBT pour les produits alimentaires commercialisés (Health Canada, 2007).

5. Conclusions

En ce qui concerne les sources du tritium, on peut retenir que la production anthropique est d'assez faible incidence à l'échelle mondiale, comparativement à la production naturelle. L'atmosphère est presque revenue aujourd'hui après la période des essais aériens à un niveau naturel, sauf à échelle locale où des concentrations de l'ordre de quelques dizaines de Becquerels par litre peuvent exister. La technologie de la fusion augmentera l'utilisation du tritium mais ne devrait pas changer le niveau des rejets.

Quelques productions spécifiques ont des impacts locaux spécifiques (substances organiques dissoutes, dispositifs luminescents). Il est évident que la cinétique et les transferts de molécules organiques sont différents de ceux de l'eau ; cependant, en règle générale, la quantité de molécules organiques produite dans les installations, même secondairement, est suffisamment faible pour que les phénomènes de dilution jouent pleinement.

Des déchets tritiés en quantité très limitée sont actuellement entreposés, mais des limites trop restrictives font obstacle à leur stockage définitif et impliquent la nécessité d'un entreposage intermédiaire.

En ce qui concerne les mesures, on retiendra qu'il existe de nombreuses techniques nécessaires au contrôle de la production de tritium et de sa purification. Il s'agit d'un domaine où des améliorations technologiques sont possibles et souhaitables en particulier si la filière fusion doit se développer.

Le deuxième point est que la préparation des échantillons est longue et délicate pour des produits solides en particulier des végétaux. Ceci implique une réflexion particulière pour la gestion et la mesure des teneurs en tritium des échantillons en cas d'incident.

En ce qui concerne les transferts dans l'environnement, la modélisation pour les rejets en fonctionnement normal des installations a peu de chance de pouvoir s'améliorer significativement. Le travail de synthèse réalisé par l'AIEA et en cours de publication constituera une référence (TRS 364 et TECDOC). Pour l'eau tritiée (HTO) : il y a dilution à chaque étape de la chaîne de transfert. La voie d'atteinte par ingestion de végétaux est clairement la voie dominante et ceci principalement par le transfert direct de l'air à la plante. Pour le dihydrogène HT

(tritium gaz) : l'impact radiologique d'un rejet est de l'ordre de quelques pourcents de celui d'un rejet équivalent sous forme HTO. La voie de transfert principale est alors le transfert sol-plante après conversion du gaz en eau.

On se souviendra que l'eau tritiée libre des plantes fournit une information sur l'activité de l'air pendant les heures précédant le prélèvement alors que le tritium organiquement lié est au contraire un intégrateur sur le temps de croissance du végétal.

Dans le cas de rejet de courte durée (accident ou incident) et du point de vue scientifique, les principaux mécanismes régissant le comportement du tritium sont connus. Le tritium ne se concentre pas dans la chaîne alimentaire, mais peut rester dans le sol, dans les conditions climatiques françaises, pendant une saison agricole. La variabilité des évaluations d'impact demeure élevée en cas d'accident particulièrement dans le cas de rejets par temps de pluie ou la nuit. Au contraire, la relation entre la dose et la concentration en tritium de l'eau des plantes pendant les deux premiers jours est peu influencée par les conditions météorologiques et les scénarios considérés. Ceci souligne l'intérêt et la nécessité du contrôle environnemental par prélèvements de végétaux après un accident.

Des expérimentations sont nécessaires pour réduire l'incertitude des calculs relative aux vitesses de dépôt sec et humide sur les sols, au prélèvement de l'eau tritiée (HTO) par les plantes à partir de l'air et du sol pendant la nuit, et à la translocation du tritium OBT au sein des plantes.

La modélisation démontre, cependant, qu'entre 1 h et 48 h, la concentration en tritium diminue et le rapport OBT/HTO augmente. Il est de ce fait important en définissant les valeurs de référence pour l'intervention, de tenir compte de cette évolution des concentrations, de la forme chimique du tritium et du type de végétal.

D'un point de vue plus pratique pour la gestion post accidentelle, on peut retenir que, bien qu'un rejet de 10 g de tritium (HTO) ait un impact radiologique faible, quelques interventions d'extension limitée au voisinage du point de rejet pourraient s'avérer nécessaires selon les conditions météorologiques et environnementales.

Un rejet de 1 kg de tritium gaz (HT) a un impact radiologique équivalent à un rejet de 10 g de tritium sous forme HTO, cependant la voie principale est alors la contamination à partir du sol.

Du point de vue de la réglementation :

- le tritium doit être considéré indépendamment des autres éléments $\beta\gamma$ en raison de sa basse radiotoxicité, et en raison de la difficulté à le confiner ;

- la limitation de 4 Bq cm^{-2} , mise en place pour des $\beta\gamma$ de forte énergie (*cf.* Sr-90) dans la réglementation des transports devrait être modifiée pour le tritium ;
- les concentrations dans les produits alimentaires recommandées par le Codex alimentarius comme niveaux de référence pour la commercialisation des produits ne sont cohérentes ni avec les critères d'exposition retenus par ailleurs ni avec les calculs réalisés par les scientifiques dans le cadre de l'AIEA ;
- en ce qui concerne l'eau de boisson, la valeur de 10^4 Bq L^{-1} de l'OMS devrait être gardée comme référence. La valeur de 100 Bq L^{-1} n'étant qu'une valeur guide pour indiquer, en absence d'installation bien connue, la présence anormale d'une source de radioactivité, qui ne se limiterait pas nécessairement qu'au seul tritium.

RÉFÉRENCES

- Alinorm (2006a) 06/29/12 Codex Alimentarius Commission report on the 38th session of the Codex Committee on food additive and contaminant, The Hague, Netherlands, 24-28 April 2006.
- Alinorm (2006b) 06/29/41 Codex Alimentarius Commission 29th session, Geneva, Switzerland, 3-7 July 2006.
- Barry P.J., Watkins B.M., Belot Y., Davis P.A., Edlund O., Galeriu D., Raskob W., Russell S., Togawa O. (1999) Intercomparison of model predictions of tritium concentrations in soil and foods following acute airborne HTO exposure, *J. Environm. Radioact.* **42**, 191-207.
- Batifol G., Séjournant C., Douche C. (2008) Tritium release reduction and radiolysis gas formation, Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fus. Sci. Technol.* **54** (1), 215-218.
- Carmin (2005) Comte A, CEA cellule Carmin-Tritium, Fiche radiotoxicologique.
- Davis P.A., Galeriu D. (1995) Evolution of HTO concentrations in soil, vegetation and air during experimental chronic HT release in V Topical Meeting on Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotope Applications, Italy, May 1995, *Fus. Technol.* **28**, 833.
- EC (1996) Council Directive 96/29/Euratom of 13 May 1996 laying down the basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers of ionising radiation, Official Journal of European Community, L159, European Commission.
- Galeriu D., Davis P., Chouhan S., Raskob W. (1995) Uncertainty and sensitivity analysis for the environmental tritium code UFOTRI, *Fus. Technol.* **28**, 853-858.
- Galeriu D., Davis P., Raskob W., Melintescu A. (2008) Tritium radioecology and dosimetry – Today and tomorrow, Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fus. Sci. Technol.* **54** (1), 237-242.
- Guétat P., Patryl L. (2008) Environmental and Radiological Impact of Accidental Tritium Release, Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fus. Sci. Technol.* **54** (1), 273-276.
- Health Canada (2007) Canadian Guidelines for the Restriction of Radioactively Contaminated Food and Water Following a Nuclear Emergency.
- IAEA (2007) EMRASS, hypothetical scenario to be published Draft on <http://www-ns.iaea.org/projects/emras/emras-tritium-wg.htm>.
- ICRP Publication 63 (1991) Principles for intervention for protection of the public in a radiological emergency, *Ann. ICRP* **22**(4).

LE TRITIUM ET L'ENVIRONNEMENT : SOURCES, MESURES ET TRANSFERTS

- Jones G.C. (2008) PWR Tritium Issues, Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fus. Sci. Technol.*, en cours de publication.
- Maubert H., Di Pace L. (2008) Doses resulting from the inhalation of ITER generated tritiated dust, *Radioprotection* **43**, 13-22.
- Mihok (2007) Tritium in precipitation in the vicinity of stacks at Canadian nuclear facilities, Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fus. Sci. Technol.*, en cours de publication.
- Mutch R.D. Jr., Mahony J. (2008) A Study of Tritium in Municipal Solid Waste Leachate and Gas, Tritium 2007 "8th international conference on tritium sciences and technology Rochester", *Fus. Sci. Technol.* 54 (1), 305-310.
- OMS (2004) Organisation mondiale de la santé, Directives de qualité pour l'eau de boisson, http://www.who.int/water_sanitation_health/dwq/gdwq3rev/fr/index.html, Vol. 1, 3^e édition, Genève, Suisse.
- UNSCEAR (2000) Sources and effects of ionizing radiation. Report to the general assembly with scientific annexes, Volume 1.
- US-DOE (2006) United States Department of Energy, Memorandum: Guidance on Deriving Intervention Levels for Tritium Contaminated Crops and Animal Feed for DOE Emergency Planning and Response Activities, May 2006.
- Wallis M.K. (2005) UK regulatory Performance in practice, the Amersham Cardiff nuclear site, 7th SRP international symposium (12-17 June 2005).