Apports de la surveillance du centre CEA-Valduc sur la connaissance des transferts de l'eau tritiée atmosphérique dans les différents compartiments de l'environnement

PH. GUETAT^{1,3}, P. LE GOFF^{2,3}, C. BOYER², J.M. DUDA³

(Manuscript reçu le 8 novembre 2012, accepté le 23 mars 2013)

RÉSUMÉ

L'objectif de ce document est de décrire le comportement du tritium dans l'environnement à partir des données de surveillance d'un centre de recherche français. Depuis la fin des années 60, le centre de Valduc a rejeté du tritium gaz et de l'eau tritiée dans l'atmosphère. Ces rejets ont conduit à des transferts aux nappes phréatiques et rivières voisines. Un bilan de la migration de l'eau tritiée à travers le système hydrogéologique est présenté sur la période 1969-2009. Les données de surveillance de l'environnement de surface apportent également de nombreuses informations sur les transferts pour la voie atmosphérique. Ceci concerne les différents compartiments : l'air, la pluie, les sols, les végétaux et les animaux. Les rapports entre les différentes concentrations des différents compartiments montrent que le transfert air-feuilles est important, que la pluie et le dépôt atmosphérique sont du même ordre de grandeur, et qu'il existe un certain équilibre entre l'eau libre et l'eau de combustion des végétaux. À l'extérieur du centre, les eaux sont toujours restées en deçà des limites actuelles de l'OMS pour la qualité des eaux de boisson. L'impact radiologique a été évalué et est actuellement inférieur à $1 \mu\text{Sv.an}^{-1}$ pour un individu de la population voisine.

ABSTRACT

Knowledge brought by survey data review from CEA Valduc about transfers in the different environmental compartments.

The objective of this document is to describe the behavior of tritium in the environment from the site survey data of a French research center. Since the late 60s, the nuclear site of Valduc has discharged tritium gas and tritiated water into the atmosphere. Those discharges have led to a transfer to the nearby groundwater and rivers. An assessment of the tritium migrating through the hydrogeological system during the 1969-2009 period is presented. Surface survey data also provide a lot of information about transfers by the air pathway to the different compartments: air, rain, soil, plants and animals. The ratios between the different compartment concentrations show that air-leaf transfer is significant, that rain and air deposition are of the same order of magnitude, and that a relatively good equilibrium exists between the free and organic material water of plants. Some outdoor experiments confirm, in agreement with the literature, the level of incorporation in organic materials. Outside the center, water always remained below the present WHO limit

¹ CEA, Cabinet du HC, CEA siège, 91191 Gif-sur-Yvette, France.

² Université de Franche-Comté, UMR CNRS 6249, LRC CEA, Laboratoire de Chimie Physique et Rayonnements-Alain Chambodet, 16 route de Gray, 25030 Besançon Cedex, France.

³ CEA, Valduc, 21120 Is-sur-Tille, France.

of quality for drinkable water. The radiological impact has been assessed and is presently less than $1 \mu\text{Sv.y}^{-1}$ for individuals of the local population.

Keywords: tritium / food chain / environmental impact / modeling

1. Introduction

Le tritium étant un radionucléide de très faible radiotoxicité (ICRP, 1978 ; ICRP, 1989) assez facilement mesurable, son utilisation dans la connaissance des mécanismes fondamentaux de transfert entre compartiments de l'écosystème conserve une grande pertinence, malgré le faible niveau des rejets actuels (Le Guen, 2008).

Les objectifs principaux de ce document sont d'une part de présenter le bilan des quantités émises depuis l'origine par le centre de Valduc et leur devenir dans l'environnement, d'autre part de fournir des données observées *in situ* sur les mécanismes de transfert de l'eau entre les différents compartiments de l'environnement et la chaîne alimentaire, grâce au traceur exceptionnel que constitue l'eau tritiée et enfin de confronter les résultats des mesures de surveillance aux modèles mathématiques.

Tous les modèles mathématiques utilisés s'appuient sur le principe de la constance du ratio isotopique $^3\text{H}/^1\text{H}$, et ont intégré dans les 15 dernières années les mécanismes d'incorporation de l'hydrogène de l'eau dans les molécules organiques des végétaux et animaux (Peterson et Davis, 2002). Il n'est pas question sur ce point de comparer à nouveau ces modèles mais principalement d'analyser la validité des hypothèses d'absence de discrimination isotopique ainsi que l'intérêt des mesures du tritium organique dans le cadre de la surveillance des sites.

2. Contexte

Le Centre de Valduc se situe en région Bourgogne, Côte d'Or, à environ 30 km au nord-ouest de Dijon, sur le plateau de Langres, à une altitude d'environ 450 m.

Acquis en 1957, il abrite aujourd'hui, entre autres, des installations « tritium » qui concernent le traitement, la purification du tritium et son conditionnement, le traitement des déchets tritiés et leur entreposage.

Seules ces installations sont génératrices de rejets atmosphériques conduisant à un marquage mesurable de l'environnement. Ceux-ci sont passés d'environ 100 g.an^{-1} au maximum (36 PBq) à un peu moins de 1 g.an^{-1} aujourd'hui, grâce à une réflexion portant sur la conception des installations qui a permis la mise en place d'un traitement de l'air (détritiation), et l'application d'une politique de

Figure 1 – Évolution des concentrations en tritium des eaux de surface (échelle logarithmique) comparée aux rejets atmosphériques annuels mesurés (principalement HTO).
Evolution of the tritium concentrations in surface waters (logarithmic scale) compared with annual tritium atmospheric releases (mainly HTO).

traitement des déchets. Les rejets des installations sont essentiellement constitués d'eau tritiée. La figure 1 présente l'évolution des rejets des origines à nos jours. Ces activités sont comparables à celles du LLNL aux États-Unis (29,3 PBq) sur la même période (Peterson, 2008).

La surveillance environnementale du site comprend des mesures hebdomadaires ou mensuelles au niveau de quatre stations (Salives au NE, Léry au SO, Moloy au SE et Echalot au NO), situées à une distance de 3 à 5 km du centre de Valduc. Des campagnes annuelles de mesures du tritium incorporé dans la matière organique des végétaux sont également réalisées. Des études à caractère scientifique sont par ailleurs régulièrement menées (Vichot *et al.*, 2007 ; Vichot *et al.*, 2008 ; Boyer, 2009 ; Boyer *et al.*, 2009a, 2009b).

L'impact radiologique a été évalué : pour des personnes vivant dans le voisinage, il est actuellement inférieur à $1 \mu\text{Sv}.\text{an}^{-1}$ pour un rejet annuel d'environ 1 gramme (360 TBq). Cette évaluation est également comparable à celle du LLNL (Peterson, 2008).

3. Données relatives à l'environnement du site

La région de Valduc est constituée par des niveaux de calcaires karstifiés séparés par un horizon marneux peu perméable épais d'une vingtaine de mètres. Cet horizon peu perméable sépare deux aquifères, un aquifère d'épaisseur moyenne de 10 mètres qui s'écoule vers les rivières de la Douix et de l'Ignon, et un aquifère

inférieur soutenu par les argiles noires du Lias. La surface d'affleurement de ce dernier est réduite aux flancs et aux fonds des vallées ce qui limite son alimentation directe par infiltration des précipitations. Il s'agit d'une nappe régionale, peu affectée par la topographie, dont l'épaisseur est de 24 mètres en moyenne, et qui est utilisable comme ressource en eau.

Trois voies de communication sont possibles entre les deux nappes : les failles et rejets de faille, l'infiltration verticale à travers les marnes et la réinfiltration de l'eau dans le calcaire contenant la nappe inférieure, après écoulement en surface sur les marnes.

Dans cette région, le climat est continental, légèrement tempéré par une influence océanique. La météorologie présente un intérêt non négligeable, d'une part pour la définition des flux d'eau entrant dans le système et d'autre part pour la répartition des dépôts au sol *via* la dispersion des effluents atmosphériques.

La hauteur de pluie mensuelle est assez stable entre 60 et 90 L.m⁻².mois⁻¹, pour une moyenne annuelle de 850 mm.an⁻¹ sur la période 1988-2007. Il pleut environ 3 % du temps.

L'évapotranspiration potentielle des végétaux a été évaluée à 667 mm.an⁻¹ en moyenne, ce qui conduit à un ensemble « infiltration et ruissellement » voisin de 200 mm.an⁻¹.

Les roses des vents révèlent une différence entre les vents de pluie venant principalement d'un secteur sud-ouest à ouest (en direction de Salives), et les vents secs, assez bien répartis, avec une légère prédominance de vents du nord observée à une hauteur de 10 m. Les vents forts sont peu fréquents.

Sur la période de végétation (mai à octobre), la moyenne mensuelle de la teneur en vapeur d'eau de l'air est de 9 g.m⁻³. L'intensité de la pluie a par ailleurs un effet sur le transfert entre les gouttes de pluie et la vapeur d'eau de l'air. Pour 78 % du temps de pluie, les pluies sont de faible intensité et inférieures à 2,5 mm.h⁻¹.

4. Bilan hydrogéologique des transferts d'eau tritiée

Les rejets atmosphériques d'eau tritiée de Valduc conduisent à un marquage des eaux du sol, des nappes et des cours d'eau, par les phénomènes de dépôts de vapeur d'eau et d'infiltration d'eau de pluie. Plus marqués dans un rayon de quelques kilomètres autour du point d'émission, les dépôts s'affaiblissent ensuite jusqu'à se perdre dans le bruit de fond de l'eau continentale.

Le bassin versant de la Douix de Léry, sur lequel se situe le centre de Valduc, est un système hydrauliquement fermé, qui est suivi depuis 3 décennies. Il est

particulièrement intéressant d'effectuer le « bilan tritium » sur cette zone géographique finie.

Sur une surface de 40 km² et durant la période de suivi, la quantité de tritium déposée et infiltrée a été d'environ 7 g (2600 TBq) soit de l'ordre de 1 % de l'activité rejetée aux cheminées (environ 700 g ou 270 000 TBq). Le bilan des entrées et sorties de tritium sur ce bassin versant met en évidence la présence d'un stock (corrigé de la décroissance radioactive en 2008) de 1,4 g (500 TBq), en migration dans la roche insaturée et saturée. À titre de comparaison, le centre de Valduc a rejeté 0,7 g (250 TBq) de tritium en 2008.

L'existence d'un stock explique le fait que la diminution des activités en tritium dans les eaux de nappe et de rivières se poursuit alors que l'évolution des rejets atmosphériques est maintenant stabilisée depuis 10 ans.

Sur un peu plus de 30 ans, 7 % de l'activité infiltrée sont ressortis du bassin versant (incluant le ruissellement et les écoulements rapides en milieu fracturé). 74 % du dépôt ont disparu par décroissance radioactive et 19 % se trouvent encore dans le milieu matriciel de la roche.

On considère que le tritium traverse sous forme d'eau libre le milieu fracturé de la surface à l'exutoire en une durée totale comprise entre 1 et 3 ans. Dans le milieu matriciel, le tritium diffusé migre beaucoup plus lentement (environ 1 m.an⁻¹), ce qui explique l'existence d'un stock résiduel.

La figure 1 montre l'évolution des concentrations en tritium des eaux de surface autour du site et l'évolution des rejets annuels. Depuis le début des rejets, toutes les activités des eaux sont en dessous du seuil de potabilité de l'eau fixé par l'Organisation Mondiale de la Santé (10⁴ Bq.L⁻¹). Les concentrations dans les deux nappes sont assez voisines. Elles se situent aujourd'hui entre 30 et 300 Bq.L⁻¹.

5. Transport atmosphérique et dépôt

Le coefficient de transfert atmosphérique est le rapport entre la concentration de l'air en un point et le débit de rejet à la cheminée. La figure 2 présente l'évolution mesurée de ce coefficient, en moyenne mensuelle, pour les quatre stations sur la période de 2005 à 2009. Les valeurs théoriques, calculées par le code Gascon utilisé au CEA, sont respectivement de 7×10^{-8} , $1,4 \times 10^{-7}$, 9×10^{-8} et $6,4 \times 10^{-8}$. On trouve ainsi une assez bonne concordance entre les valeurs mesurées et calculées à un facteur 2 près.

Figure 2 – Coefficients de transfert atmosphérique mesurés aux quatre stations de surveillance de 2005 à 2009.
Measured atmospheric transport coefficients at the 4 external stations for air quality control from 2005 to 2009.
 (1,00E-08 : lire 1×10^{-8})

Le dépôt sec a été évalué à partir de prélèvements continus de l'air et de la pluie, et de prélèvements mensuels de l'eau du sol sur trois stations du site sur une année entière (1999-2000).

Les contributions de la vapeur d'eau de l'air et de l'eau de pluie à l'activité de l'eau du sol doivent pouvoir se déduire d'une simple équation : $C_{\text{sol}} = f C_{\text{air vap}} + (1 - f) C_{\text{pluie}}$. Les concentrations de la vapeur d'eau de l'air et de la pluie étant différentes dans chaque direction de vent (Tab. I), la fraction f provenant de l'air s'avère être effectivement une constante proche de 30 %. Autrement dit, ceci conduit, en considérant une hauteur totale de pluie de 700 mm et une humidité de l'air moyenne de 8 g.m^{-3} , à un dépôt de 300 mm.an^{-1} de vapeur, et à une vitesse apparente de dépôt de $1,2 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. Ces résultats sont en bonne concordance avec les recommandations de l'AIEA : « a default value of 0.3 is reasonable » (Davis *et al.*, 2009).

6. Incorporation de l'hydrogène de l'eau dans les molécules organiques, rappel des concepts

L'hydrogène étant un élément chimique majeur à la surface de la terre, constituant de l'eau et de toutes les molécules de la matière organique, l'« accumulation »

TABLEAU I

Concentration en tritium dans les eaux de l'air, de la pluie et du sol dans 3 directions de vents.
HTO air, rain and soil concentrations in 3 different wind directions.

Station sur site	au Sud	au Nord-Est	au Nord-Ouest
HTO vapeur eau (Bq.L ⁻¹) ¹	142	243	236
HTO pluie (Bq.L ⁻¹) ¹	36	238	100
HTO sol (Bq.L ⁻¹) ²	69	231	132
0,3 HTO _{vap} + 0,7 HTO _{pluie}	68	239	140

¹ moyenne annuelle par prélèvement continu. ² moyenne des prélèvements ponctuels mensuels.

d'hydrogène par unité de masse des êtres vivants n'est guère possible. En revanche, des phénomènes de fractionnement isotopique peuvent apparaître dans les multiples réactions d'anabolisme et catabolisme des molécules organiques (Belot, 1986 ; Diabaté et Strack, 1993).

Pour quantifier ces phénomènes, il est d'usage de mesurer les concentrations en tritium le long des chaînes de transferts et d'évaluer les rapports de concentrations entre deux compartiments successifs. Un rapport d'activité massique (³H/¹H) supérieur à 1 traduit un phénomène de concentration, et un phénomène de déplétion s'il est inférieur à 1. Cette approche suppose néanmoins que la liaison entre deux compartiments soit univoque, ce qui est en réalité rarement le cas. En effet plusieurs phénomènes sont à distinguer :

- Le premier est relatif aux différences physico-chimiques entre isotopes d'un même élément (température d'ébullition, vitesses de diffusion, vitesse de réaction chimique...). Ce sont ces propriétés qui sont utilisées pour isoler un isotope donné d'un élément (Tab. II) (Belovodski *et al.*, 1985). On parle alors d'enrichissement ou d'appauvrissement isotopique. Ces différences de propriétés sont relativement faibles entre ³H, ²H et ¹H dans les conditions naturelles et nécessitent de nombreux processus, opérations ou réactions pour parvenir à une modification sensible du rapport isotopique. Les processus biologiques mettant en œuvre un très grand nombre de réactions (comme la photosynthèse) pourraient être, d'après certains auteurs, susceptibles de faire apparaître de tels phénomènes de fractionnement isotopique. Cela expliquerait alors que les teneurs en tritium dans les molécules organiques ne correspondent généralement pas aux bilans stœchiométriques des réactions métaboliques (McFarlane, 1976; Kim et Baumgärtner, 1991; Diabaté et Strack, 1993, Kim et Baumgärtner, 1994).
- Le deuxième phénomène est relatif aux transferts de molécules organiques le long d'une chaîne alimentaire, lorsqu'elles ne font pas l'objet d'une élimination

TABLEAU II

Propriétés physico-chimiques des eaux selon les isotopes (^1H , $^2\text{H D}$ et $^3\text{H T}$).
Physical and chemical characteristics of waters depending on isotopes (^1H , $^2\text{H D}$ and $^3\text{H T}$).

Propriété physico-chimique	H ₂ O	D ₂ O	HTO	T ₂ O
Densité maximale g/cm ³	1,000	1,1056		1,215 ¹
Masse atomique	18,0153	20,0275	20,0235	22,0315
Température de fusion	0,0 °C	3,81 °C		4,49 °C
Température d'ébullition	100,00	101,42 °C	101,51 °C	101,52 °C ¹
Point triple	0,01 °C	3,80 °C	2,25 °C	4,49 °C ¹
pH à 25°C	7	7,41		

¹ Belovodski *et al.* (1985).

par les organismes traversés (molécules à grande stabilité telles que le dichlorodiphényltrichloroéthane, couramment appelé DDT). L'incorporation de telles molécules peut alors conduire à une augmentation de la concentration de ces molécules avec le niveau trophique. Cette propriété est utilisée en laboratoire : le marquage de molécules avec du tritium permet de suivre leur devenir dans les organismes et d'un organisme à l'autre. En particulier si la molécule est bioaccumulée, le tritium en tant que marqueur l'est aussi et sa mesure permet de quantifier ces transferts.

- Troisièmement, les êtres vivants élaborent de la matière organique constituée de centaines de milliers de molécules organiques différentes. Le concept de « tritium organique » tel qu'utilisé par la Commission Internationale de Protection Radiologique (ICRP, 1989) concerne ainsi toutes les molécules du bol alimentaire, dans une approche globalisante, nécessairement très simplificatrice, mais ayant néanmoins un sens en termes de temps moyen de résidence dans l'organisme et de taux d'incorporation, de renouvellement et d'élimination. Les caractéristiques retenues dans ces conditions ne peuvent pas et ne doivent pas être utilisées pour des molécules spécifiques ayant leur métabolisme propre.
- Enfin, le temps de résidence de l'eau dans les organismes est généralement beaucoup plus court que celui des molécules organiques (Thompson et Ballou, 1954). Ces dernières reflètent l'histoire de l'organisme de sa naissance jusqu'au moment du prélèvement, alors que l'eau libre ne reflète généralement que la situation des dernières heures avant le prélèvement. Cet aspect temporel peut conduire, si l'on n'y prend garde, à des rapports de concentration du tritium entre forme organique et eau libre nuls ou très grands, sans aucun rapport avec un quelconque phénomène de concentration ou déplétion.

On appelle « **eau libre** » d'un organisme l'eau extraite, par un moyen de déshydratation (distillation, lyophilisation) sans altération de la matière organique. Elle comprend l'eau intracellulaire et extracellulaire comme l'eau des vaisseaux conducteurs de sèves chez les végétaux. L'eau libre représente en moyenne plus de 70 % de la masse des parties non lignifiées des plantes et plus de 60 % en masse pour les animaux.

L'eau libre des feuilles se charge puis se décharge assez rapidement en tritium, avec une demi-vie biologique de l'ordre de quelques heures pendant la journée, lorsque les végétaux sont temporairement placés dans une atmosphère contenant de la vapeur d'eau tritiée (Kline et Stewart, 1974 ; Dinner *et al.*, 1980 ; Guenot et Belot, 1984 ; Spencer, 1984 ; Choi *et al.*, 2002 ; Davis *et al.*, 2002). Ceci révèle une diffusion de l'eau de l'air vers l'eau contenue dans la plante, principalement à travers les stomates, malgré un flux d'eau essentiellement sortant. Cette fraction est notée TFWT pour « Tissue Free Water Tritium » (Kim et Baumgärtner, 1994). Chez l'animal et l'homme, après absorption unique d'eau tritiée, l'activité maximale en eau tritiée du milieu intérieur (et des urines) est également atteinte en quelques heures, et la période biologique d'élimination est de l'ordre de quelques jours à la dizaine de jours (Galeriu *et al.*, 2008 ; Galeriu et Melintescu, 2011).

Des molécules d'eau libre entrent dans des chaînes de réactions biochimiques et leurs hydrogènes peuvent alors être incorporés lors de l'élaboration de molécules organiques. Ceci se produit en particulier lors de la photosynthèse chez les végétaux, mais aussi lors de nombreux processus métaboliques ultérieurs, chez les animaux comme chez les végétaux. Le tritium organique non-échangeable de l'animal provient cependant, dans les conditions naturelles, essentiellement du tritium organique non-échangeable des aliments (Davis *et al.*, 2002).

Compte tenu de la quantité très importante d'eau évacuée par transpiration par les végétaux, moins de 5 % de l'eau absorbée est finalement mobilisée pour la croissance et le développement. Une fraction encore moindre intervient directement dans les réactions biochimiques. Finalement, la fraction d'hydrogène convertie en matière organique est de 0,06 % à 0,3 % pour les plants en développement (Okada et Momoshima, 1993).

On appelle « **eau de combustion** » l'eau obtenue en brûlant la matière sèche en présence d'oxygène et en absence d'autre source d'eau pendant la combustion. L'eau de combustion ne contient ainsi que l'hydrogène issu de la matière organique ; celui-ci représente 5 à 12 % en masse de la matière sèche. Les hydrogènes initialement inclus dans des molécules organiques étaient soit fixés à des carbones lors de réactions de synthèse, soit faiblement liés à des atomes d'azote, d'oxygène ou de soufre, et alors facilement échangeables avec d'autres hydrogènes faiblement liés, notamment ceux de l'eau libre.

Figure 3 – Activités en tritium des eaux libres de la biosphère (vapeur d'eau de l'air, pluie, eau de rivière, eau libre des plantes et du lait) mesurées de 2005 à 2009 à Salives (sous les vents dominants par temps de pluie).

Tritium concentrations measured in air moisture, rain, river, plant free water and milk from 2005 to 2009 at the "Salives" station (under the prevailing winds in rain).

Les liaisons entre atomes de tritium et carbone sont fortes et persistent jusqu'à la dégradation des molécules. L'incorporation de tritium en position non-échangeable peut ainsi s'effectuer pendant toute la croissance de l'organisme, en particulier pour les végétaux, pour lesquels les synthèses sont beaucoup plus importantes que le catabolisme. Par contre le tritium en position échangeable reflète la concentration de l'eau libre dans les heures précédant le prélèvement de l'échantillon.

De ce fait l'activité dans l'eau de combustion représente d'une part une valeur moyenne de l'activité, intégrée sur le temps de vie de l'organisme et d'autre part la valeur, presque instantanée, de l'activité de l'eau libre. On comprend ainsi que le « tritium organique » (noté OBT pour « Organically Bound Tritium »), n'est pas une grandeur pertinente si l'on ne connaît pas simultanément et *a minima* l'activité de l'eau libre et la proportion d'hydrogène échangeable dans l'échantillon, pour appréhender la teneur en tritium organique non échangeable.

7. Transferts de l'eau tritiée entre les différents compartiments de la biosphère

Sur l'exemple des données de Salives, la figure 3 montre l'évolution du marquage en tritium de différents compartiments de la biosphère : l'air, la pluie, les eaux de surface, le végétal et le lait.

L'eau de la vapeur d'eau de l'air a, pendant la très grande majorité du temps, la concentration la plus forte.

La concentration dans l'eau de la Tille à Salives apparaît très stable sur toute la période et peu sensible à la pluie. Elle dépend en pratique, et pour une grande part, de celles des eaux d'infiltration et de la nappe phréatique dont l'activité est plus élevée que celle de l'eau de pluie pour les raisons indiquées dans le bilan hydrogéologique précédent.

Les fluctuations de l'activité dans la vapeur d'eau de l'air sont liées principalement à la variabilité de la direction des vents. L'activité dans l'eau de pluie est sensiblement plus faible d'un facteur 3 à 10, ce qui est conforme aux modèles mathématiques utilisés pour estimer l'échange entre la vapeur d'eau de l'air et les gouttes de pluie à cette distance de l'émissaire. La décorrélation apparente entre les fluctuations de l'activité tritium de l'air et de celle de l'eau de pluie s'explique par la proportion de temps de pluie (faible), et par la répartition en direction et intensité des vents très inhomogène sur la semaine (période des relevés atmosphériques).

L'eau libre des plantes se situe en règle générale entre les activités tritium de la vapeur d'eau de l'air et de l'eau de pluie. L'eau de pluie a théoriquement une influence assez faible dans les transferts du tritium à la plante. Ceci se justifie par l'importance des dépôts au sol de vapeur d'eau de l'air par temps sec et par une prédominance de la voie de transfert direct air - feuille. Cependant, l'observation montre que l'eau de pluie a une influence plus forte que celle attendue dans le transfert de l'eau libre aux plantes. Selon Davis *et al.* (2009), l'eau libre des plantes devrait avoir une concentration très proche de la concentration de la vapeur d'eau de l'air (70 à 80 %), mais ce n'est pas le cas sur l'ensemble des données.

On remarque par ailleurs que l'eau libre des plantes atteint la concentration de la vapeur d'eau de l'air quand la station est sous le vent par temps de pluie (Sept 2006 et Sept 2008). Ceci pourrait s'expliquer par une diffusion maximale dans le mécanisme d'échange air - feuille (stomates) dans ces conditions particulières. Mais en règle générale, l'activité de l'eau libre de la plante est en moyenne de l'ordre de 50 % de l'activité de la vapeur d'eau de l'air.

Enfin, l'évolution de l'activité de l'eau libre du lait au cours du temps est cohérente avec l'activité de l'eau de la Tille à Salives qui est notamment alimentée par la nappe (*cf.* paragraphe 10).

8. Incorporation du tritium dans la matière organique des plantes à partir de l'eau de l'air et du sol

Deux types d'expériences ont été conduites (Boyer, 2009) pour mieux appréhender les mécanismes d'incorporation du tritium dans la matière organique des plantes à

Figure 4 – Cinétique d'incorporation de l'eau tritiée de la vapeur d'eau de l'air à l'eau libre de la plante, en 24 h, en conditions d'éclairement de jour, en fonction de l'âge des feuilles.
Kinetics of incorporation of tritiated water from air moisture to plant free water, in 24 h, in light conditions, versus age of leaves.

Figure 5 – Cinétique d'incorporation de l'eau tritiée de la vapeur d'eau de l'air à l'eau libre de la plante, en 24 h, en absence de lumière, en fonction de l'âge des feuilles.
Kinetics of incorporation of tritiated water from air moisture to plant free water, in 24 h, in dark conditions, versus age of leaves.

partir de l'eau de l'air et du sol. Des plants de laitue à trois âges différents ont été placés pendant 24 heures dans une atmosphère contenant de l'eau tritiée, en présence ou en l'absence de lumière (Figs. 4 et 5). Dans chaque cas, on constate une augmentation de l'activité TFWT au cours du temps jusqu'à un maximum compris entre 7 % et 43 % de l'activité de la vapeur d'eau atmosphérique selon l'âge des plants.

Figure 6 – Concentrations mesurées dans la vapeur d'eau de l'air, l'eau libre et l'eau de combustion des végétaux.

Measured concentrations in air moisture, plant free water and OBT combustion water.

D'autres laitues ont été exposées, dans les conditions naturelles du centre de Valduc, pour la durée complète de croissance (60-80 jours). La vapeur d'eau de l'air, l'eau libre et l'eau de combustion de la matière organique ont été mesurées. Pour quatre expériences indépendantes, les rapports de concentration entre TFWT et activité de la vapeur d'eau de l'air ont été de 43 %, 29 %, 88 % et 46 %. Toutes ces données amènent à penser que l'équation proposée par Davis *et al.* (2009) pour estimer la concentration de l'eau libre conduit à surestimer cette activité.

La figure 6 présente à titre d'exemple l'une des expérimentations conduites à l'extérieur. L'activité de l'eau libre fluctue entre l'activité de la vapeur d'eau et celle de l'eau du sol. En données moyennes sur la période d'observation, le rapport entre l'activité en tritium organique non-échangeable (en Bq.L^{-1} d'eau de combustion) sur l'activité de l'eau libre a été pour les 4 expériences de $1,7 \pm 0,3$, $2,4 \pm 0,6$, $2,1 \pm 1,2$ et $2,1 \pm 0,8$. Le rapport entre l'activité en tritium organique non-échangeable sur l'activité dans la vapeur d'eau de l'air, plus faible, est respectivement de $1,5 \pm 0,7$, $1,1 \pm 0,4$, $0,9 \pm 0,5$ et $0,6 \pm 0,2$.

Pour préciser les mécanismes mis en jeu, plusieurs revues de synthèse comparent les activités de la vapeur d'eau de l'air, de l'eau libre des plantes et des eaux de combustion de la matière organique (Boyer *et al.*, 2008, Jean-Baptiste *et al.*, 2011). Il est intéressant de voir qu'elles arrivent toutes à la même conclusion : l'activité de l'eau libre est généralement de l'ordre de deux fois plus faible que l'activité de la vapeur d'eau de l'air.

Les mesures d'eau de combustion de la matière organique (OBT en Bq.L^{-1}) ne font pas partie du plan de surveillance du site de Valduc. Des campagnes de mesures d'eau de combustion de la matière organique (OBT en Bq.L^{-1}) sont cependant régulièrement réalisées dans les environs, souvent en parallèle de celles d'une association indépendante locale (Structure d'échange et d'information sur Valduc) (Tab. III). Seules les valeurs détaillées de l'association ont été reportées

TABLEAU III
Activités de divers produits alimentaires en tritium organique et eau libre de végétal.
Plant edible part activities, organic and free water tritium – comparison between CEA and association measurements.

Commune	Distance de Valduc en km	Année	Aliment ou végétal	CEA		SEIVA		CEA	
				ratio CEA	ratio SEIVA	eau libre Bq.L ⁻¹	eau de combustion Bq.L ⁻¹	Vapeur d'eau de l'air Bq.L ⁻¹	Eau de pluie Bq.L ⁻¹
Salives	4	1988	Feuilles de chêne (Oak leaves)				400	425	
		1998					80	94,8	14
		2001					157	106	24
		2006					40	105	17
Le Meix	2	2001	Girolles (mushrooms)	0,7	0,4	214	91,15		
Poisul-les-S	9	2001		2,3	1,9	7	13,4		
Frénois sud	4	2001		0,4	0,5	142	77,34		
Salives N.E.	4	2001		0,5	2,0	19	37,16	106	24
Auxonne	35	2003	Salades	0,6	1,8	1,33	2,41		
Lamargelle	15	2003		1,6	2,8	4,17	11,58		
Salives	4	2003		1,6	1,7	31,75	52,63	59	23
Auxonne	58	2003	Poireaux (Leeks)	1,7	0,7	1,55	1,09		
Lamargelle	4	2003		2,6	8,1	2,98	24,09		
Salives	5	2003		0,9	1,1	27,55	30,59	59	23
Salives	4	2004	Pommes de terre ¹ (potatoes)	0,92	4,6	33,6	155,36	87	15,6
Lamargelle	5	2004		1	5,4	6,5	34,78		
Auxonne	58	2004		0,8	4,9	1,8	8,75		
Salives	4	2004	Pommes ¹ (Apples)	0,9	11,4	47,2	540,32	87	15,6
Grancey-	15	2004		0,89	10,5	8,9	93,36		
Arcelot	35	2004		0,94	11,2	1,6	18		
Echalot	2	2008	Carottes			15,5		61	13,9

Figure 7 – Activités en tritium des compartiments et des végétaux à Salives pendant l'été 2009.
Compartments and vegetable tritium activities in Salives during summer 2009.

ici, étant donné que les valeurs de concentration dans l'eau libre sont généralement très voisines entre les deux entités.

Les divergences éventuelles entre les mesures d'eau de combustion apparaissent sur les ratios eau de combustion/eau libre. D'une manière générale, on constate qu'il n'y a pas de différence très significative entre eau libre et eau de combustion en termes de concentration. Les écarts dans les ratios mesurés par le CEA et la SEIVA peuvent, selon toute vraisemblance, s'expliquer par une grande hétérogénéité des conditions de prélèvements et de conservation des échantillons. Dans les quelques cas où l'on peut croiser ces données avec des données de l'air ou de la pluie, on constate que la valeur concernant l'eau de combustion est relativement proche de celle de la vapeur d'eau de l'air, mais assez largement supérieure à celle de l'eau de pluie.

9. Campagne 2009 de mesures de tritium organique dans les végétaux

En 2009, une campagne plus importante de mesure a été conduite avec l'objectif de recueillir simultanément les données de pluie, sol, et les parties consommables des plantes (eau libre et eau de combustion) pendant la principale période de photosynthèse, en juin et juillet (Fig. 7). Cette étude a porté essentiellement sur le blé, qui est supposé être une source importante de tritium organique (Raskob et Barry, 1997 ; Guetat et Patryl, 2004) et le colza, les lipides ayant une teneur massique en hydrogène (~12 %) double de celle des protéines et glucides (Diabaté et Strack, 1993). Pendant la même période, des pommes de terre et des pommes ont été prélevées et analysées pour confirmer ou infirmer les résultats précédents.

À la station de Salives, la concentration dans l'air présente deux pics d'activité dans la seconde semaine de juin et la troisième de juillet, séparés par une période non-exposée en première semaine de juillet. Pendant cette semaine, toutes les concentrations ont chuté de 250 Bq.L^{-1} à environ 40 Bq.L^{-1} , y compris celle de l'eau de combustion de la matière organique, jusqu'à une valeur qui est celle du bruit de fond en ce lieu (valeur de l'eau du sol). Le tritium organique réaugmente légèrement pendant la seconde période d'exposition puis rechute à la récolte. Ces observations sont en cohérence avec le fait que le tritium organique du blé fonctionne comme un intégrateur pour la part non échangeable, avec un effet tampon de la masse synthétisée d'autant plus fort qu'on s'approche de la récolte. Mais il comprend aussi une part non négligeable de tritium échangeable (théoriquement un tiers). Avec une concentration moyenne de la vapeur d'eau de l'air de 100 Bq.L^{-1} sur toute la période de croissance des grains, l'activité des épis en tritium organique est à la récolte de 56 Bq.L^{-1} , ce qui peut s'expliquer soit par une contribution de l'eau du sol pour moitié dans l'élaboration de la matière organique, soit par un remplissage des grains à vitesse évoluant en fonction du temps et prépondérante pendant la période de faible exposition. Pour les autres végétaux, il a été observé pendant la même période, à la récolte : 84 Bq.L^{-1} pour le colza (grain), $38,2 \text{ Bq.L}^{-1}$ pour les pommes de terre et 70 Bq.L^{-1} pour des pommes. Il apparaît que les différences entre plantes sont moindres que les fluctuations de chaque plante en fonction du temps. Le ratio eau de combustion/eau libre se situe entre 0,25 et 6, prouvant ainsi que ce ratio est un très mauvais indicateur.

D'un point de vue de la radioprotection et en considérant toutes les formes chimiques du tritium de tous les végétaux d'une ration alimentaire, l'exposition provenant de l'ingestion de tritium organique non échangeable semble finalement modérée, même en incluant le blé et les pommes de terre. Sur l'ensemble des observations effectuées, on rejoint de façon assez nuancée les constatations de DeVol et Powell (2004) : « *Pour le grain, l'approche théorique surestime significativement la dose comparativement aux résultats expérimentaux* ». (DeVol *et al.* (2004))

Compte tenu de la part importante de l'eau tritiée, directe (HTO) ou indirecte (OBT_e), dans les évaluations d'impact, la connaissance précise de la fraction organique des plantes dans la surveillance de l'environnement d'un centre nucléaire apparaît être d'assez faible intérêt.

10. Produits animaux

L'exposition des cheptels bovins se fait par voie atmosphérique (essentiellement HTO), *via* leurs rations alimentaires (HTO et tritium organique) et par l'eau

Figure 8 – Évolution des activités volumiques en tritium dans l'eau d'abreuvement et dans l'eau libre du lait d'un cheptel de vaches laitières élevées dans les environs de Valduc ainsi que l'HTO atmosphérique entre février 1999 et décembre 2011.

Evolution of tritium-specific activities of drinking water and free water in milk of lactating cows bred in the vicinity of Valduc and the HTO in air moisture between February 1999 and December 2011.

d'abreuvement. L'hydrogène ingéré par les bovins provient pour près des 2/3 des apports de l'eau d'abreuvement. Dans ces conditions, on s'attend à pouvoir déceler l'influence de l'eau et de la ration alimentaire, selon l'existence et l'importance relative du marquage de ces deux voies de transferts.

Dans l'environnement de Valduc, le lait de vache fait l'objet d'un suivi régulier auprès d'une exploitation agricole voisine du site. Comme pour les végétaux, on distingue l'activité de l'eau libre de celle de la matière sèche.

Sur ces données de surveillance, l'activité volumique de l'eau du lait semble fortement corrélée à celle de l'eau d'abreuvement des cheptels (Fig. 8), avec une moyenne du ratio de l'activité volumique du lait sur celle de l'eau d'abreuvement de 0,86 (intervalle de confiance à 95 % de 0,80 à 0,91). Ce ratio est proche du ratio 0,83 obtenu lors d'une expérience consistant à abreuver des vaches laitières par de l'eau tritiée (Van den Hoek et Ten Have, 1983). Ceci n'écarter pas l'hypothèse d'un apport par ingestion de nourriture tritiée, une corrélation du même type existant avec les rejets annuels (Fig. 1). De l'eau est alors également apportée par la nourriture et par l'anabolisme de molécules organiques tritiées. Les fluctuations

TABLEAU IV

Activités volumiques de l'eau libre et de l'eau de combustion des principales fractions organiques d'un lait prélevé dans les environs de Valduc (tritium non échangeable).
Volume activities of the free water and the combustion waters of the main organic compartments of a milk collected in the vicinity of Valduc (non-exchangeable tritium).

	Activité Volumique des eaux (en Bq.L ⁻¹)	% d'hydrogène non- échangeable ¹	Activité volumique non-échangeable ²	Activité relative ³
Eau libre	25,5 ± 2,0			
Matière grasse	19,6 ± 1,8	96 %	21,7 ± 2,0	0,85
Caséines	29,7 ± 2,4	65 %	45,8 ± 3,7	1,80
Protéines sériques	18,4 ± 2,8	65 %	31,0 ± 4,7	1,22
Lactose	20,4 ± 2,9	64 %	31,9 ± 4,5	1,25

¹ Favier (1985).

² Activité volumique de l'eau de combustion corrigée de la dilution isotopique apportée par l'échange labile soit l'activité volumique qu'aurait l'eau de combustion si seul l'hydrogène non-échangeable avait été oxydé.

³ Ratio entre l'activité volumique non-échangeable et l'activité volumique de l'eau libre du lait.

observées sur le lait depuis 2003 et non visibles sur l'eau laissent penser à une influence des rejets atmosphériques, eux-mêmes soumis au rythme annuel dû à la température dans les bâtiments d'entreposage des déchets tritiés et aux directions générales des vents dans les semaines précédant les récoltes.

Les premières mesures de tritium organique ont été réalisées en 1996 sur quelques échantillons provenant de Léry. Pour 30 Bq.kg⁻¹ frais d'herbe, l'activité en tritium organique du lait de deux prélèvements était de 25 Bq.kg⁻¹ sec et 52 Bq.kg⁻¹ sec. Pour la viande, cette activité était de 29 Bq.kg⁻¹ sec. Avec environ 8,7 % d'hydrogène dans la matière sèche organique du lait, 1 kg de matière sèche produit presque 0,8 L d'eau de combustion. Il n'apparaissait pas ainsi d'enrichissements manifestes entre la ration de la vache et les produits animaux. Ces observations macroscopiques sont cohérentes avec celles de la littérature (Galeriu *et al.*, 2007).

En 2011 et 2012, des mesures ont été réalisées sur du lait produit par l'exploitation suivie, afin de compléter les données sur l'activité volumique de l'eau libre par celles de l'eau de combustion de ses principales fractions organiques. Ces mesures (Tab. IV) révèlent une influence du tritium consommé sous forme organique non-échangeable. En effet, le ratio de l'activité volumique de la matière grasse du lait sur celle de l'eau libre est supérieur d'au moins un facteur 2 à celui donné dans la littérature par des auteurs ayant étudié le marquage chronique induit uniquement par l'abreuvement avec de l'eau tritiée (Kirchmann *et al.*, 1969 ;

Kistner, 1971 ; Van den Hoek et Ten Have, 1983). Les différences entre les modes opératoires ne permettent pas de faire la comparaison pour les autres compartiments organiques (absence de lavage du tritium labile dans les articles publiés).

Les résultats (Tab. IV) montrent que le rapport T/H dans les différents compartiments considérés (eau et fractions organiques) est variable. Parmi les composants organiques du lait notamment, on note que ce rapport varie d'un facteur 2 (si on considère l'activité volumique corrigée) entre la matière grasse et les caséines. Il est également intéressant de noter que les caséines et les protéines sériques, pourtant de même nature chimique, ont des rapports isotopiques sensiblement différents.

11. Poissons

Des poissons ont été étudiés en 1986. Pour des carpes, perches et gardons, l'hydrogène représente respectivement 7,9 %, 6,8 % et 6 % du poids sec. L'activité de l'eau du milieu était de 1740 Bq.L^{-1} , correspondant à des concentrations dans l'eau libre des poissons de 1440 à 1550 Bq.L^{-1} . L'activité de la matière sèche de la chair se situait entre 4400 et 5860 Bq.kg^{-1} sec, et correspondait à une activité proche de celle des sédiments (4890 Bq.kg^{-1}). On peut noter que l'humidité de l'air, et en conséquence des feuilles présentes dans le voisinage de l'étang peut aisément expliquer le niveau de concentration des sédiments. Des gardons ont été prélevés à nouveau en 1994. Avec 6,0 % d'hydrogène dans la matière sèche, 540 g d'eau de combustion par kg de matière sèche, et 75 % d'eau libre, les gardons avaient une concentration dans l'eau libre de 2657 Bq.L^{-1} et une eau de combustion de la matière organique de 3305 Bq.L^{-1} . Dans ce cas également, un ratio de 1,2 entre l'hydrogène organique et celui de l'eau libre n'est pas significatif.

12. Discussion

Cette revue des différents transferts, allant des cheminées jusqu'à la table des individus du public exposés, à partir des résultats de surveillance sur une longue période, montre que même pour un élément très mobile, les temps de séjour dans certains compartiments peuvent être longs. C'est en particulier le cas pour les roches du sous-sol de Valduc dans lesquelles la cinétique est lente.

La réponse de l'environnement après une diminution des rejets peut ainsi nécessiter plusieurs années avant de trouver un certain équilibre.

Les résultats de la surveillance du site, et ceux des études plus détaillées réalisées annuellement, sont en assez bon accord avec ceux de la littérature en ce qui concerne le transfert de l'air aux eaux du sol (Davis *et al.*, 2009).

Mais, il y a probablement dans l'évaluation actuelle des expositions (Davis *et al.*, 2009) une surestimation de la voie air-feuille pour l'eau libre. Une assez bonne équivalence existe entre la concentration de l'humidité de l'air et celle de l'eau de combustion des plantes, alors qu'on observe souvent une plus faible concentration dans l'eau libre. Cela peut s'expliquer par une contribution de l'eau du sol plus importante que celle actuellement supposée.

Pour rendre compte de ces observations, il pourrait être proposé les équations suivantes :

$$C_{\text{sol w}} = 0,3 C_{\text{air vap}} + 0,7 C_{\text{pluie}}$$

$$A_{\text{eau libre}} = WC_{\text{pl}} (0,4 C_{\text{air vap}} + 0,6 C_{\text{sol w}})$$

$$A_{\text{T Org}} = (1 - WC_{\text{pl}})WEQ_{\text{pl}}(\alpha C_{\text{air vap}} + (1 - \alpha) C_{\text{sol w}})$$

avec A : activité nominale par unité de poids frais de la plante, C : concentration, WC : teneur en eau, WEQ équivalence en eau, α : taux de contribution de la voie air, w : eau, pl : plante et vap : vapeur d'eau.

En ce qui concerne les activités des légumes, les différences liées à la nature du végétal, s'il en est, sont probablement faibles par rapport à la variabilité dans le temps de l'activité de l'eau libre de chacun des légumes.

Par défaut et en particulier pour les légumes feuilles, on peut prendre pour l'humidité relative de l'air, selon l'usage consacré (Davis *et al.*, 2009), mais l'on a vu qu'une valeur de 0,5 serait peut-être plus appropriée pour le blé.

Les questions relatives à la nature échangeable ou non des atomes de tritium sont pertinentes. Une meilleure compréhension des proportions entre tritium organique et tritium non échangeable conduirait probablement à réduire les évaluations des doses, en contrebalançant d'autres approximations soulignées par ailleurs (Black *et al.*, 1964). Le point délicat est bien évidemment le temps et le coût de la préparation des échantillons, qui ne sont pas adaptés aux besoins réels de la surveillance d'un Centre nucléaire, compte tenu de la faiblesse des expositions.

À l'échelle macroscopique, il est utile de souligner qu'aucun enrichissement n'apparaît de manière significative dans la chaîne alimentaire terrestre en liaison avec des rejets d'eau tritiée. L'utilisation du ratio eau de combustion/eau libre conduit à des malentendus du fait qu'on compare les activités de deux compartiments qui ne sont pas directement et exclusivement liées, et devrait donc être évitée.

13. Conclusions

Bien que l'activité rejetée par le centre de Valduc soit, depuis près de 10 ans, stabilisée à un niveau faible, celles des nappes et eaux de surface ont continué à décroître, faisant apparaître ainsi le rôle et l'influence du tritium encore en stock dans la géosphère.

L'hypothèse de la constance du rapport isotopique, pondérée par l'importance relative des compartiments source est confortée par les données de la surveillance, même si la multiplicité des voies ne permet pas d'affirmer avec certitude l'importance relative des phénomènes en jeu.

Ces observations permettent de confirmer, pour le site français ayant eu les rejets de tritium les plus élevés, les propos déjà anciens de Murphy « les effets isotopiques chimiques et physiques, bien que présents dans les mécanismes de transfert et les réactions chimiques ne sont pas des facteurs importants de la dynamique du tritium dans l'environnement. De plus, du fait du rôle de l'hydrogène dans le métabolisme des organismes vivants et de son omniprésence dans l'environnement, les organismes n'ont pas développé de mécanisme pour accumuler ou concentrer l'hydrogène dans les chaînes alimentaires » (Murphy, 1993).

C'est donc principalement sur les facteurs de pondération des différentes voies de transfert que portent les interrogations.

En pratique, la pluie, par l'intermédiaire de l'eau du sol, semble diminuer l'activité de l'eau libre des plantes, mais avoir assez peu d'influence sur la tritiation de leur matière organique.

Il n'apparaît pas de différence importante entre les activités volumiques de l'eau de combustion et de l'eau libre, à un facteur 5 près pour les végétaux. Cela peut s'expliquer par l'omniprésence de l'eau dans tous les compartiments de l'environnement et la grande variété des origines et des échanges. Compte tenu par ailleurs des difficultés de mesure du tritium organique à ces faibles niveaux, la mise en évidence d'une discrimination entre T et H, sur des données de surveillance, est en pratique impossible.

Une légère discrimination isotopique a cependant pu être mise en évidence, lors d'une étude scientifique, sur les différents produits composant le lait.

Pour les plantes, deux phénomènes intégrateurs existent qui sont d'une part la fabrication de matière organique et d'autre part le dépôt au sol. L'activité déposée se retrouve ensuite dans l'eau libre des plantes. De ce fait, pour la surveillance environnementale des rejets chroniques, où l'on cherche à détecter des niveaux de concentration qui seraient de plusieurs ordres de grandeur supérieurs, la mesure du tritium sans distinction de forme chimique répond de façon satisfaisante au besoin.

RÉFÉRENCES

- Belot Y. (1986) Tritium in plants: a review, *Radiat. Prot. Dosim.* **16** (1-2), 101-105.
- Belovodski L.F., Gaevoi V.K., Grichmanovski V.I. (1985) *Tritium*, Moscow Energoatomizdat.
- Black A.L., Baker N.F., Bartley J.C., Chapman T.E., Phillips R.W. (1964) Water turnover in cattle, *Science* **144**, 876-878.
- Boyer C., Guetat Ph., Fromm M., Vichot L., Losset Y., Tatin-Froux F., Badot P.M. (2008) Tritium in plants: A review of current knowledge, *Environmental and Experimental Botany* **67**, 34-51.
- Boyer C. (2009) Étude des transferts du tritium atmosphérique chez la laitue: étude cinétique, état d'équilibre et intégration du tritium sous forme organique lors d'une exposition atmosphérique continue, Thèse de l'Université de Franche-Comté.
- Boyer C., Vichot L., Boissieux T., Losset Y., Mavon C., Tatin-Froux F., Fromm M., Badot P.M. (2009a) Variations of conversion rate from Tissue Free Water Tritium to Organically-Bound Tritium in lettuces continuously exposed to atmospheric HT and HTO, *Radioprotection* **44** (5), 671-676.
- Boyer C., Guetat Ph., Fromm M., Vichot L., Losset Y., Tatin-Froux F., Mavon C., Badot P.M. (2009b) Étude du transfert du tritium aux végétaux via les ratios OBT/HTO_{air} et OBT/HTO_{libre}, *Journées Tritium Société Française de Radioprotection Section Environnement*, Paris 23-24 Septembre.
- Choi Y.H. *et al.* (2002) Tissue free water tritium and organically bound tritium in the rice plant acutely exposed to atmospheric HTO vapor under semi-outdoor conditions, *J. Environ. Radioact.* **58**, 67-85.
- Davis P.A., Kotzer T.G., Workman W.J.G. (2002) Environmental Tritium Concentrations due to continuous atmospheric sources, *Fusion Science and Technology* **41**, 453-457.
- Davis P.A., Leclerc E., Galeriu D.C., Melintescu A., Kashparov V.S., Peterson R., Ravi P.M., Siclet F., Tamponnet C. (2009) Specific activity models and parameter values for tritium, ¹⁴C and ³⁶Cl, in *Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments*, IAEA-TECDOC-1616.
- DeVol T.A., Powell B.A. (2004) Theoretical organically bound tritium dose estimates, *Health Phys.* **86** (2), 183-186.
- Diabaté S., Strack S. (1993) Organically bound tritium, *Health Phys.* **65** (6), 698-712.
- Dinner P.J., Gorman D.J., Spencer F.S. (1980) Tritium dynamics in vegetables: Experimental results, *Appl. Radiat. Isotopes* **31** (8), 460-468.
- Favier J. (1985) Composition du lait de vache – II. Laites de consommation, *Cah. Nutr. Diét.* **20**, 355-363.
- Galeriu D. *et al.* (2007) Modelling ³H and ¹⁴C transfer to farm animals and their products under steady state conditions, *J. Environ. Radioact.*, DOI:10.1016/j.jenvrad.2006.11.010.
- Galeriu D., Melintescu A., Beresford N.A., Takeda H., Crout N.M.J. (2008) The dynamic transfer of ³H and ¹⁴C in mammals: a proposed generic model, *Radiat. Environ. Biophys.*, DOI: 10.1007/s00411-008-0193-9.
- Galeriu D., Melintescu A. (2011) A model approach for tritium dynamics in wild mammals, *Radioprotection* **46** (6), S445-S451.
- Guenot J., Belot Y. (1984) Assimilation of ³H in photosynthesizing leaves exposed to HTO, *Health Phys.* **47** (6), 849-855.
- Guétat Ph., Patryl L. (2004) Analysis of the consequences of an acute atmospheric release of tritium, "Tritium 2004 baden-baden", *Fusion Science and Technology* **48** (1), 441-444.
- ICRP Publication 30 (1978) Limits for intakes of radionuclides by workers, Part 1. *Ann ICRP* **2** (3/4) Pergamon Press, Oxford.

- ICRP Publication 56 (1989) Age-dependent doses to members of the public from intakes of radionuclide, Part 1, *Annals of the ICRP* **20**(1) Pergamon Press, Oxford.
- Jean-Baptiste P., Fourré E., Baumier D., Dapoigny A. (2011) Environmental OBT/TFWT ratios revisited Tritium 2010, *Fusion Science and Technology* **60** (4), 1248-1251.
- Kim M.A., Baumgärtner F. (1991) Tritium Fractionation in Biological Systems and in Analytical Procedures, *Radiochim. Acta* **54**, 121-128.
- Kim M.A., Baumgärtner F. (1994) Equilibrium and non-equilibrium partition of tritium between organics and tissue water of different biological systems, *Applied Radiation and Isotopes* **45**, 353-360.
- Kirchmann R., Lafontaine A., Van den Hoek J., Koch G. (1969) Transfert et repartition du tritium dans les constituants principaux du lait de vaches alimentées avec de l'eau contaminée, *Compte-rendu de séance de la Société Belge de Biologie* **163**, 1459-1463.
- Kistner G.N. (1971) Tritium excretion via cow's milk after continuous intake of tritiated water, *Tritium Symposium*, Las Vegas, 30 août-2 septembre.
- Kline J.R., Stewart M.L. (1974) Tritium uptake and loss in grass vegetation which has been exposed to an atmospheric source of tritiated water, *Health Phys.* **26**, 576-573.
- Le Guen B. (2008) Impact du tritium autour des centrales nucléaires EDF, *Radioprotection* **43** (2), 177-191.
- McFarlane J.C. (1976) Tritium fractionation in plants, *Environmental and Experimental Botany* **16**, 9-14.
- Okada S., Momoshima N. (1993) Overview of tritium: characteristics, sources and problems, *Health Phys.* **65**, 595-608.
- Murphy C. (1993) Tritium Transport and Cycling in the Environment, *Health Phys.* **65** (6), 683-697.
- Peterson S.-R., Davis P.A. (2002) Tritium doses from chronic atmospheric releases: a new approach proposed for regulatory compliance, *Health Phys.* **82** (2), 213-225.
- Peterson S.-R. (2008) Dose to the public from tritium released to the atmosphere from the Livermore site of Lawrence Livermore National Laboratory, 1953 through 2005, *Health Phys.* **95** (2), 190-202.
- Raskob W., Barry P. (1997) Importance and variability in processes relevant to environmental Tritium ingestion models, *J. Environ. Radioactivity* **36** (263), 237-251.
- Spencer F.S. (1984) Tritiated water uptake kinetics in tissue-free water and organically-bound fractions of tomato plants, Ontario Hydro Research Division.
- Thompson R.C., Ballou J.E. (1954) Studies of metabolic turnover with tritium as a tracer-IV. Metabolically inert lipid and protein fractions from the rat, *J. Biol. Chem.* **208**, 883-888.
- Van den Hoek, J., Ten Have M.H.J. (1983) The metabolism of tritium and water in the lactating dairy cow, *Health Phys.* **44**, 127-133.
- Vichot L., Boyer C., Boissieux T. (2007) Organically bound tritium in the environment: first investigation of environmental survey in the vicinity of a French research centre, *Fusion science and technology* **54** (1), 253-256.
- Vichot L., Boyer C., Boissieux T. (2008) Organically bound tritium (OBT) for various plants in the vicinity of a continuous atmospheric tritium release, *J. Environ. Radioact.* **99** (10), 1636-1643.