

ARTICLE

Rejets de tritium dans l'environnement et impact : évolutions récentes et perspectives

C. Fayolle*, M. Fournier, G. Plancque, N. Reynal et O. Riviere

ASN, Direction de l'environnement et des situations d'urgence, CS 70013, 92541 Montrouge Cedex, France.

Reçu le 27 janvier 2021 / Accepté le 14 avril 2021

Résumé – Plusieurs publications ont suscité des interrogations en France sur le comportement du tritium dans l'environnement et sur son impact sur la santé de l'homme. En 2008, l'ASN a demandé à deux groupes d'experts de faire le point de l'état de l'art sur le sujet. Un plan d'action découlant des recommandations exprimées a été présenté dans le Livre Blanc du Tritium publié en 2010. Depuis, le comité chargé de son suivi a abordé périodiquement les sujets identifiés. Les avancées métrologiques, les travaux de recherche concernant le transfert et le niveau d'activité du tritium dans l'environnement ont été étudiés. La compréhension de sa toxicité a progressé. Les exploitants des INB ont caractérisé les formes physico-chimiques des effluents tritiés existantes dans les rejets de leurs installations. Chaque année, l'ASN met à jour sur le site du Livre Blanc l'inventaire des rejets de tritium des INB et INBS et des impacts dosimétriques associés. Les actions du comité relatives aux sujets de recherche encore en cours étant maintenant limitées, l'ASN a proposé de clore les travaux du comité sous sa forme actuelle et de traiter les travaux de recherche non encore finalisés lors d'une journée dédiée qui sera organisée par l'IRSN.

Mots clés : radioprotection / impact environnemental / effets sur la santé / tritium

Abstract – Tritium discharges in the environment and consequences: Recent advances and perspectives. Several publications have raised questions in France about the behavior of tritium in the environment and its impact on human health. In 2008, ASN asked two groups of experts to make a state of the art on this subject. An action plan based on the recommendations by these groups of experts was presented in the Tritium White Paper published in 2010. Since then, the follow-up committee has periodically addressed the identified topics. Metrological progresses, research work on the transfer and level of tritium activity in the environment were studied. The understanding of its toxicity has progressed. The operators of nuclear facilities have characterized the physicochemical forms of tritiated effluents existing in the discharges from their installations. Each year, ASN updates the inventory of tritium releases from nuclear facilities and the associated dosimetric impacts on the White Paper website. As the committee's actions concerning research subjects still in progress are now limited, ASN proposed to close the committee's work in its current form and to deal with research work not yet completed during a dedicated seminar organized by IRSN.

Keywords: radioprotection / environmental impact / health effect / tritium

1 Contexte

Le tritium, isotope radioactif de l'hydrogène et émetteur bêta de faible énergie, est généralement considéré comme un élément de faible radiotoxicité. Son parcours moyen dans l'eau est faible. D'origine naturelle ou issu des activités humaines, il existe sous plusieurs formes physicochimiques (eau (HTO), vapeur d'eau, hydrogène tritié (HT), tritium organiquement

lié (TOL)), qui peuvent avoir des effets sur la matière vivante. Plusieurs publications ont suscité en 2007 des interrogations sur le comportement du tritium dans l'environnement et sur les modalités d'évaluation de son impact sur la santé de l'homme (RIFE 11, 2006 ; AGIR, 2007). Pour apporter des éléments de réponse à ces interrogations, l'ASN a mis en place, dès 2008, deux groupes de réflexion pluralistes chargés d'établir, d'une part, un état des lieux des connaissances scientifiques relatives à l'impact environnemental et sanitaire du tritium, et, d'autre part, un inventaire des sources et de l'impact des installations sur la production de tritium. Les groupes ont formulé de

*Auteur de correspondance : corinne.fayolle@asn.fr

nombreuses recommandations dont quelques-unes sont rappelées ci-après. Les experts ont conseillé la poursuite du travail de validation et de normalisation des méthodes et protocoles de mesure et d'échantillonnage. Bien que la maîtrise des procédés mis en œuvre permette la comptabilisation des rejets effectués dans l'ensemble des installations, la nécessité d'une meilleure connaissance des termes sources a été mise en exergue par les experts. Il est apparu aussi que la détritiation des effluents produits dans la plupart des installations nucléaires de base (INB) ne pouvait pas être réalisée à des coûts acceptables et avec les meilleures techniques disponibles. Un plan d'action découlant de l'ensemble des recommandations a été présenté dans le Livre Blanc du Tritium (ASN, 2010a). Depuis lors, le comité chargé du suivi des actions décidées dans le cadre de ce plan s'est réuni périodiquement¹ à l'initiative de l'ASN, abordant notamment l'amélioration des connaissances relatives à l'analyse du tritium et les travaux de recherche visant à une meilleure compréhension des transferts de ce radionucléide dans les milieux atmosphérique, terrestre et aquatique. Le comité a examiné en particulier l'avancement des actions réalisées par les principaux exploitants d'installations nucléaires concourant à la maîtrise des rejets du tritium dans l'environnement et l'estimation de l'impact radiologique du tritium sur la population. Concernant les effets biologiques du tritium et les risques sanitaires associés, une synthèse des travaux disponibles à octobre 2016 a été publiée par l'UNSCEAR (UNSCEAR, 2017).

2 Analyse du tritium dans les matrices environnementales et dans les rejets d'effluent

L'analyse des différentes formes physico-chimiques du tritium dans l'environnement et dans les effluents s'est considérablement améliorée. La Commission d'établissement des méthodes d'analyses (CETAMA) et le Bureau de normalisation d'équipements nucléaires (BNEN) ont fait part de l'état d'avancement de leurs travaux respectifs. Parmi les réalisations du sous-groupe tritium du GT31 (dédié à l'analyse des radionucléides dans l'environnement) de la CETAMA, on note par exemple la participation des laboratoires du GT à plusieurs exercices nationaux et internationaux d'inter-comparaison, la mise au point d'une méthode d'analyse des eaux de référence à bas niveau par recroissance de l'hélium 3 ou encore une étude sur l'influence du lieu de stockage d'échantillons devant faire l'objet d'analyse de TOL. S'appuyant sur certains des travaux de la CETAMA, notamment la méthode 384 « analyse du tritium dans les matrices environnementales » (CETAMA, 2013), le BNEN a publié plusieurs normes françaises se rapportant au mesurage du tritium dans diverses matrices de l'environnement (AFNOR, 2019, 2020) et dans les rejets d'effluents gazeux (AFNOR, 2011, 2012, 2014). Les exploitants ont à leur disposition un corpus normatif plus étoffé, qu'ils adoptent au fur et à mesure de la parution des textes.

Bien que l'analyse du tritium ait progressé, des actions sont encore à mener. Parmi celles-ci, on citera par exemple la nécessité de réaliser des comparaisons inter-laboratoires dans

le but de déterminer des biais éventuels induits par les différents systèmes de prélèvement, ou d'améliorer les techniques permettant d'effectuer les analyses d'échantillons comportant de faibles teneurs en tritium.

Les progrès effectués en analyse ont contribué pour partie à la bonne mise en œuvre des recommandations formulées dans le Livre Blanc du tritium relatives à la caractérisation du tritium dans les effluents des installations nucléaires et dans l'environnement.

3 Nature et maîtrise des rejets de tritium (exploitants et ASN)

Dans le but de cerner les sources industrielles de rejet de tritium sous forme organique, les « grands exploitants » des installations nucléaires (EDF, CEA, Areva/Orano) ont présenté l'état d'avancement des travaux qu'ils ont engagés pour répondre aux demandes de l'ASN effectuées entre 2010 et 2014 (ASN 2010b, 2014). Les questionnements de l'ASN se rapportaient à la caractérisation des formes physico-chimiques des effluents tritiés rejetés dans le milieu tant d'un point de vue qualitatif que quantitatif. Il s'agissait également d'étudier l'existence possible de précurseurs organiques.

Les effluents étant principalement rejetés sous forme liquide dans les réacteurs à eau pressurisée, EDF a réalisé une étude (Mérignac, 2017), dans laquelle une méthode d'analyse permettant de caractériser les différentes formes physico-chimiques du tritium dans les effluents liquides a été développée. Cette étude a démontré que le tritium était présent dans les effluents liquides sous forme d'eau tritiée (HTO) à plus de 99,99 %. Aucune molécule organique marquée au tritium n'a été caractérisée dans les effluents liquides rejetés par les CNPE.

En s'appuyant sur la base de produits chimiques utilisés et sur une étude concernant les produits à usage industriel, le CEA a indiqué en 2014 (CEA, 2014) ne pas avoir identifié de substances organiques entrant dans les procédés mis en œuvre dans ses installations. L'exploitant a néanmoins effectué une recherche de précurseurs organiques dans les effluents des centres de Cadarache, Marcoule et Saclay qui a conclu à l'absence de TOL en quantité significative dans les effluents rejetés par les centres précités. À l'issue de l'analyse effectuée par l'IRSN, l'ASN a demandé au CEA d'étudier la présence éventuelle de TOL dans les effluents gazeux et liquides du service de chimie bio-organique et de marquage (SCBM) du site de Saclay (ASN, 2016a). Cette étude (CEA, 2017) a conclu, d'une part, que pour les effluents liquides, la part du TOL sous forme non échangeable (TOL-NE) est négligeable (inférieure à 1 %) par rapport aux formes de TOL échangeable et HTO contenues dans ces mêmes effluents. Selon une estimation de l'IRSN, la part de TOL présente dans les effluents liquides du SCBM serait au plus de 6 %. D'autre part, concernant les effluents gazeux tritiés du SCBM, les rejets de TOL sous forme non échangeable sont estimés par le CEA de l'ordre de 0,4 % de la quantité totale de tritium rejeté à la cheminée. Afin de conforter la démonstration du caractère insignifiant du niveau d'exposition de la population au TOL, l'ASN a demandé à l'exploitant de compléter son analyse par l'examen de la teneur en TOL dans l'environnement autour du centre de Saclay (ASN, 2020).

¹ Réunions tenues les 6 juillet 2011, 4 juillet 2012, 4 décembre 2013, 31 mars 2015 et 4 octobre 2017.

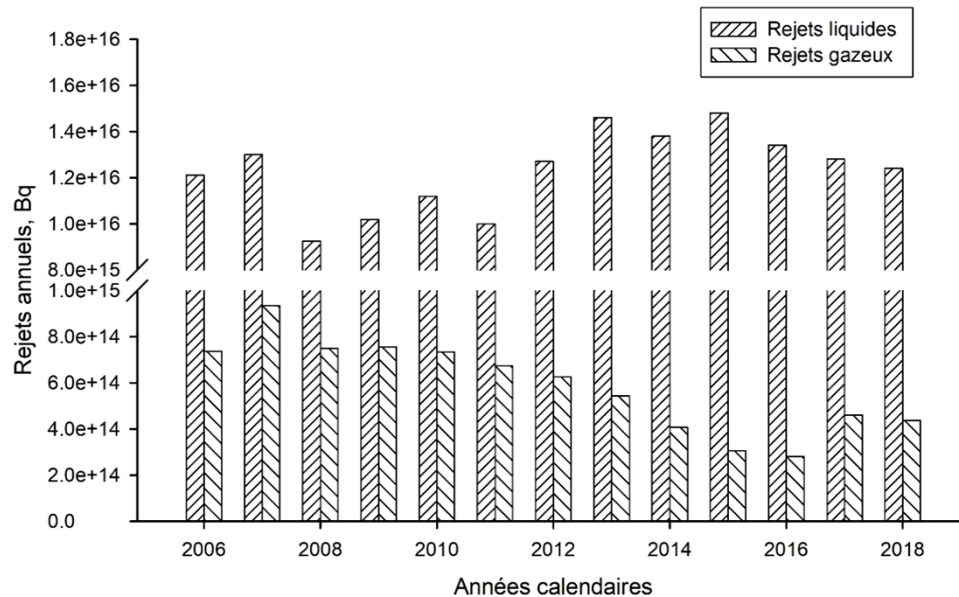


Fig. 1. Rejets liquides et gazeux en tritium cumulés issus des INB et INBS entre 2006 et 2018 (Source : ASN, 2019).

Orano Cycle a indiqué qu'aucune forme de TOL n'avait été mise en évidence d'après les études réalisées sur les rejets gazeux du site de La Hague (Areva, 2013a). Par ailleurs, l'exploitant a estimé que les activités de TOL mesurées dans les solvants utilisés dans le processus de l'usine, tels que le tributyl-phosphate, précurseur organique principal présent dans les rejets liquides, étaient faibles et engendreraient une dose très faible (inférieure au picoSievert par an) pour la population de référence considérée (Areva, 2013b). Enfin, d'autres analyses réalisées sur des matrices biologiques locales ne permettent pas de conclure à une concentration plus importante du TOL que de HTO dans les échantillons marins prélevés à proximité du site (Areva, 2013c). Après consultation de l'IRSN, l'ASN a demandé à l'exploitant d'effectuer une étude complémentaire permettant de vérifier entre autres, l'absence de tritium dans les effluents de lavage des gaz de l'atelier de minéralisation des solvants (MDSB) (ASN, 2016b). Les derniers éléments de cette étude transmis à l'ASN en mars 2019 (Areva, 2017 ; Orano, 2019) concluent que le tritium présent dans les effluents liquides de l'établissement Orano Cycle de la Hague est rejeté principalement sous forme HTO, la forme TOL étant négligeable. Cette étude confirme que l'impact dosimétrique associé à la forme organiquement liée du tritium présent dans les effluents liquides est très faible (inférieure au picoSievert par an).

Les différentes études fournies par les exploitants ont été examinées par l'ASN et l'IRSN, afin de statuer sur la cohérence des conclusions annoncées et l'atteinte des objectifs. Devant l'augmentation observée des rejets de tritium des installations nucléaires civiles, en l'absence de technique de détritiation, l'ASN a considéré qu'il était nécessaire de pérenniser l'inventaire des sources de production de tritium en France et a demandé aux exploitants de lui adresser chaque année et pour chaque site, le bilan des rejets tritium effectués l'année précédente, avec la part de l'impact qu'ils représentent par rapport à l'estimation de l'impact total du site (ASN, 2010b). Depuis 2010, l'ASN publie annuellement, sur le site Internet du Livre Blanc (ASN, 2010a), la synthèse des rejets de

tritium des INB et INBS (Fig. 1) ainsi que des impacts dosimétriques (dont la part induite par le tritium) déclarés pour chaque site par les exploitants en France.

Contrairement à d'autres radionucléides présents dans les effluents des installations nucléaires tels que les produits de fission et d'activation (césium, cobalt, iodes, etc.) dont les rejets ont decru jusqu'au milieu des années 1990 grâce à l'amélioration des procédés de traitement des effluents, les rejets de tritium sont quant à eux restés stables.

Conformément à la réglementation² le calcul de l'impact dosimétrique est réalisé pour trois classes d'âge (adulte, enfant, nourrisson). L'estimation de l'impact dosimétrique peut être comparée à la limite annuelle de la dose admissible pour le public (1 mSv/an) définie à l'article R. 1333-11 du code de la santé publique. Pour la plupart des sites nucléaires, l'impact dosimétrique reste chaque année très inférieur à ou, au plus, de l'ordre de 1 % de cette limite.

4 Transfert du tritium dans les milieux atmosphérique et terrestre

Afin de mieux appréhender le comportement du tritium issu des rejets des installations nucléaires existantes ou futures, dans les différents compartiments de l'environnement, l'IRSN a publié plusieurs travaux de recherche relatifs au transfert de ce radionucléide dans les milieux terrestre et atmosphérique. Concernant le milieu terrestre, le projet VATO avait pour objectif de modéliser le transfert du tritium au sein d'un système prairial sous influence d'installation nucléaire. Ce travail a permis la détermination de la cinétique de formation du TOL, la quantification des dépôts de tritium sous forme HTO par temps sec ou humide, la détermination de la cinétique de formation de HTO dans le sol à partir d'une source

² Article 5.3.2 de la décision n°2013-DC-0360 de l'ASN du 16 juillet 2013 modifiée relative à la maîtrise des nuisances et de l'impact sur la santé et l'environnement des installations nucléaires de base.

atmosphérique d'hydrogène tritié (HT) et l'évolution des formes chimiques du tritium dans l'air (rapport HT/HTO) (Maro *et al.*, 2017). Les expérimentations ont été réalisées sur l'atelier nord situé à 2 km au nord de l'usine Orano Cycle La Hague qui émet du tritium dans l'atmosphère. Les dépôts humides du tritium sur le sol et la diffusion du tritium sous forme HT dans le sol ont été quantifiés. Une rémanence du tritium sous la forme HTO, très facilement échangeable, a été observée. Les résultats expérimentaux obtenus ont été utilisés pour implémenter et valider le modèle TOCATA (Le Dizès *et al.*, 2013) pour le calcul des concentrations de tritium dans l'environnement à la suite de rejets chroniques ou accidentels.

Concernant le milieu atmosphérique, le projet SPECTRA (spéciation du tritium dans l'atmosphère), dont les derniers résultats sont attendus vers 2022, a pour objectif l'étude des formes physico-chimiques du tritium dans l'atmosphère dans des zones hors influence et sous influence des rejets atmosphériques de l'usine Orano Cycle La Hague. La caractérisation des niveaux de concentration des différentes formes physico-chimiques du tritium et en particulier la quantification de l'évolution de l'hydrogène sous forme HT de l'atmosphère en interaction avec les sols se poursuit. La valorisation de cette étude est actuellement en cours.

5 Niveaux et comportement du tritium dans l'environnement

La connaissance des niveaux ambiants de tritium dans l'environnement français a également progressé, que ce soit sous ou hors influence des rejets d'installations nucléaires (IRSN, 2017), en particulier pour le compartiment atmosphérique et le compartiment aquatique continental. Parmi les résultats obtenus, les valeurs de référence sous la forme HTO sont connues et leur variabilité expliquée dans le compartiment aquatique continental, au contraire de celles de la forme TOL dans les sédiments encore incomplètes. La connaissance des niveaux de référence du tritium dans les plantes, les organismes vivants, les matrices biologiques et les sédiments du domaine aquatique marin n'est pas encore finalisée. Dans le compartiment marin, les valeurs de bruit de fond sous forme HTO sont établies. Celles de la forme TOL dans les organismes vivants et les sédiments font défaut. Les gammes de variation de la forme TOL ne sont pas connues dans l'océan Atlantique ou dans la Manche. En Méditerranée, les activités en HTO dans les eaux de surface du domaine marin côtier, hors influence du Rhône, sont plus élevées que celles des eaux de surface qui se trouvent plus au large. Les valeurs de référence du TOL acquises pour les poissons, crustacés et moules sont supérieures aux teneurs en HTO mesurées au large mais s'approchent de la gamme des valeurs de référence observée en milieu côtier. Il a aussi été montré que la majorité des teneurs de la forme TOL observées dans l'environnement s'explique par celles de la forme HTO du milieu ambiant. Cependant, certaines de ces teneurs en TOL, notamment dans le cas des végétaux aquatiques, plantes pérennes ou à métabolisme lent, des sols et sédiments, sont parfois supérieures aux niveaux environnants en HTO, ce qui est sans doute imputable aux retombées atmosphériques des essais ou rejets industriels anciens et à la rémanence du tritium dans l'environnement.

La rémanence du tritium a fait l'objet de nombreuses études dans chacun des compartiments afin d'expliquer les déséquilibres observés entre les formes TOL et HTO (Baglan *et al.*, 2011 ; Fiévet *et al.*, 2013 ; Eyrolle-Boyer *et al.*, 2015 ; Kim *et al.*, 2016). Sur le long terme, le tritium sous forme HTO, qui suit le cycle de l'eau, s'intègre à la matière organique, tandis que le tritium sous forme TOL suit le cycle du carbone. De fait, la persistance et la mobilité du TOL dans l'environnement sont très différentes de celle du tritium sous forme HTO. Ces observations expliquent les phénomènes de rémanence et de bioaccumulation apparente. Ils sont observés aujourd'hui dans l'ensemble des compartiments de la biosphère. Pour les organismes vivants du milieu marin, les concentrations en TOL peuvent s'interpréter par la présence de différentes formes physico-chimiques dans le milieu qui sont assimilées par des voies et avec des taux de transfert différents. Le régime alimentaire des organismes vivants du milieu marin, l'origine et la nature des particules susceptibles d'être absorbées doivent être pris en compte et permettent de comprendre les phénomènes de rémanence. Tous ces paramètres expliquent le comportement du tritium et la plupart des déséquilibres apparents TOL/HTO observés dans l'environnement.

6 Effets biologiques du tritium et risques sanitaires associés

L'eau de boisson et l'alimentation sont des sources potentielles de HTO et TOL. Bien que les différentes normes existantes relatives aux eaux de boisson varient beaucoup pour le tritium, cette variabilité, liée au choix de l'application de critères dosimétriques différents, ne pose pas de difficulté sanitaire en raison des faibles niveaux de tritium mesurés. Il s'est cependant avéré nécessaire d'améliorer la compréhension de la toxicité du tritium et de mieux cerner ses effets sanitaires dans ce type de matrice. Des études ont été réalisées conjointement par l'IRSN, Canadian Nuclear Laboratories (CNL) et la commission canadienne de sûreté nucléaire (CCSN), afin de mieux comprendre les effets d'une exposition chronique par ingestion de tritium sous forme HTO ou TOL à de faibles doses et faibles débits de doses avec pour objectif une meilleure connaissance des effets biologiques liés à ce type d'exposition sur l'homme.

Elles ont été réalisées chez la souris, avec un protocole de contamination chronique *via* l'eau de boisson pendant 1 ou 8 mois. Les animaux ont été exposés au tritium sous forme HTO ou TOL, à différentes concentrations depuis la valeur guide de l'OMS (10 kBq/L) jusqu'à des concentrations élevées (20 MBq/L). Ces différentes expérimentations ont permis, entre autres, une étude de la biocinétique et de la biodistribution du tritium sous forme HTO et TOL et des analyses relatives aux effets non cancéreux et de génotoxicité. Pour la forme TOL, seuls des acides aminés tritiés ont été étudiés à ce jour parce qu'ils constituent un composant important du métabolisme cellulaire et ne sont pas fixés de manière préférentielle par l'ADN (COG, 2015 ; Gueguen *et al.*, 2018). Parmi les principaux résultats, on note que les profils de rétention des formes HTO et TOL sont très proches (Priest *et al.*, 2017), avec toutefois une rétention légèrement plus élevée pour le TOL (64%/50%). La similarité de ces profils ne

présage cependant pas du comportement des deux formes aux niveaux cellulaire et tissulaire. Les formes HTO et TOL sont excrétées dès l'arrêt de l'exposition des souris. Pour les deux formes, le comportement en termes de distribution/excrétion n'est pas dépendant de la dose. L'étude des effets biologiques non cancéreux (Gueguen *et al.*, 2018) montre que la réponse à l'exposition au tritium est organe-dépendante. Aucune atteinte macroscopique n'a été observée pour les organes étudiés mais il a été constaté une modification du profil de l'expression des gènes au niveau rénal, vasculaire ou du système hématopoïétique.

Pour un temps d'exposition supérieur à huit mois à la forme TOL, les effets observés sont plus marqués. Ainsi, une anémie légère et une modification de métabolisme du fer ont été observées essentiellement chez les souris ingérant la forme TOL et non chez les souris exposées à la forme HTO (Bertho *et al.*, 2019). Cette étude montre que les effets observés sont dépendants de la forme HTO ou TOL du tritium. Par ailleurs, la comparaison avec des animaux recevant une irradiation externe à un débit de dose comparable à celui dû à l'ingestion de tritium montre que les effets observés sont dus à l'ingestion de tritium.

Une étude de génotoxicité a été réalisée (Roch-Lefèvre *et al.*, 2018) et semble indiquer que les expositions chroniques au tritium induisent peu de dommages à l'ADN et ont peu d'effet sur la capacité des cellules à réparer l'ADN par rapport à ce qui est observé dans le groupe témoin. Le tritium semble être plus génotoxique sous sa forme TOL que sous sa forme HTO et également plus génotoxique que l'exposition aiguë aux rayonnements gamma, aux doses et débits de dose ainsi que pour les temps d'exposition étudiés. La génotoxicité du tritium supérieure sous la forme TOL pour des doses inférieures à 200 mGy, impliquerait une efficacité biologique relative (EBR) supérieure à 1 aux faibles doses, mais ce résultat présente de fortes incertitudes.

Les études menées par Canadian Nuclear Laboratories (CNL) sur les effets cancéreux du tritium sont en cours de finalisation.

Le CEA a évoqué plusieurs études dont l'objectif devait être l'amélioration de la connaissance de la toxicité du tritium au niveau cellulaire et moléculaire après exposition au radionucléide. L'une d'entre elle a consisté en la recherche de la concentration maximale en tritium pour laquelle, après une exposition de courte durée, des cellules de levure exposées au tritium survivaient et pouvaient réparer les dommages causés. Une dilution de solutions mères de trois molécules organiques tritiées (MOT: uracile, leucine et méthionine) couvrant une gamme plus large que celle allant des concentrations des effluents ($\sim 10^8$ Bq/L) jusqu'au seuil de potabilité de l'eau aux États-Unis (740 Bq/L) a été réalisée. Quelle que soit la molécule tritiée, la croissance de la levure est ralentie pour une concentration en tritium de 8×10^8 Bq/L et redevient normale pour une concentration de 8×10^7 Bq/L. Aucune mortalité cellulaire significative n'est relevée pour les différentes dilutions testées. Le tritium est bien retrouvé dans les différentes fractions attendues. Quelle que soit la concentration en activité ajoutée dans le milieu de culture, le protéome et le transcriptome sont très peu altérés. D'autres études, permettant de suivre l'impact d'une exposition plus

longue des levures pour une concentration en activité plus faible sont en cours. Les premiers résultats indiquent qu'après une phase de ralentissement de croissance, pendant environ 2 jours, les cellules retrouvent un fonctionnement normal après quatre jours d'exposition. Ce travail a, entre autres, permis de mettre au point une méthodologie applicable à d'autres types de cellules.

Par ailleurs, les études épidémiologiques existantes étant peu nombreuses et pas assez robustes du fait de leur faible puissance statistique ou du manque d'informations sur l'exposition au tritium (Little et Lambert, 2008), l'analyse de la faisabilité d'études épidémiologiques chez les travailleurs en France qui intégrerait les données relatives à l'exposition au tritium s'est révélée nécessaire. Dans ce contexte, le CEA a notamment présenté, parmi différents axes de recherche, une étude épidémiologique avec analyse de la mortalité des salariés uniquement exposés au tritium (EmseH3) entre 1964 et 2012 pour les centres du CEA DAM Ile-de-France, Valduc et Marcoule. Un des objectifs est l'estimation de la dosimétrie interne individuelle pour les valeurs significatives calculées à partir des contrôles urinaires hebdomadaires (ou incidentels) pratiqués sur les salariés. Les résultats de ce travail (Martin et Ségala, 2021), centralisés dans une base de données, ne permettent pas de démontrer un effet de la dose cumulée due au tritium en raison du faible niveau d'exposition et de la petite taille de la cohorte.

Enfin, un questionnement est apparu au sujet de la valeur de l'EBR relatif au rayonnement bêta du tritium. Plusieurs travaux (Duport *et al.*, 1996; Little et Lambert, 2008) ont mentionné une possible sous-estimation de cette EBR. Étudiées principalement pour la forme HTO, les valeurs d'EBR sont comprises entre 1 et 3,5 (IRSN, 2009). Il a aussi été montré que le mode de décroissance par désintégration radioactive bêta pouvait induire, par une incorporation rapide du tritium dans l'ADN des organismes vivants, une forte toxicité potentielle, entraînant des valeurs d'EBR supérieures à 1 pour la forme TOL. Mais devant les fortes incertitudes relatives à la détermination de l'EBR, la Commission internationale de protection radiologique (CIPR) a confirmé l'utilisation d'un facteur unique de pondération égal à 1 (ICRP, 2007; Paquet et Métivier, 2008).

Le facteur de pondération W_R utilisé dans le calcul de la dose efficace étant choisi pour être représentatif de l'EBR du rayonnement considéré pour le déclenchement d'effets stochastiques à doses faibles (ICRP, 2007), l'ASN a saisi la CIPR en 2011 (ASN, 2011), afin de réexaminer sa valeur. En réponse, la CIPR a entre autres rappelé en 2012 les écarts de facteur de dose rencontrés à Sellafield entre les formes TOL et HTO et la non linéarité des effets faibles doses pour le tritium (ICRP, 2012). Dans ce contexte, et bien que le facteur de pondération radiologique (W_R) du tritium soit réglementairement égal à 1, l'ASN a demandé aux exploitants la fourniture systématique, en complément de leurs études d'impact classiques, d'une variante comportant un W_R égal à 2 pour le tritium (ASN, 2010b). Il est à noter que de nouveaux facteurs de dose relatifs à la radioprotection des travailleurs pour le tritium ont été publiés (ICRP, 2016), mais le facteur de pondération du tritium reste pour le moment inchangé.

7 Conclusions

À la suite de la parution du Livre Blanc du Tritium en 2010, le comité chargé du suivi des actions s'est réuni périodiquement. L'amélioration des connaissances relatives à l'analyse, la maîtrise des rejets, la surveillance de l'environnement et l'estimation de l'impact radiologique du tritium ont été examinées. Des réponses ont été apportées aux questionnements soulevés par l'ASN, même si des actions restent à finaliser. Parmi les avancées métrologiques, on note la publication de plusieurs normes de mesurage du tritium dans les matrices de l'environnement et les rejets d'effluent ainsi que la mise en œuvre de plusieurs comparaisons interlaboratoires. Des travaux de recherche relatifs au transfert du tritium et à son niveau d'activité dans l'environnement ont été menés. La compréhension de la toxicité du tritium a aussi progressé. Il a été montré, entre autres, que les effets génotoxiques et non cancéreux du tritium à des concentrations proches des concentrations environnementales dans les eaux de boisson, restent très limités. À des concentrations plus élevées, on observe des effets biologiques différents selon la forme HTO et TOL du tritium, soulignant l'importance de la spéciation du tritium dans les risques associés à une exposition à ce radionucléide. De façon générale, peu d'effets ont été observés, y compris pour les expositions chroniques. Les exploitants ont caractérisé les différentes formes physico-chimiques des effluents tritiés existantes dans les rejets de leurs installations d'un point de vue qualitatif et quantitatif. L'inventaire des rejets de tritium des INB et des INBS et des impacts dosimétriques associés est publié chaque année par l'ASN sur le site Internet du Livre Blanc du Tritium.

L'amélioration des connaissances étant tangible, en particulier concernant l'analyse et la caractérisation des formes physico-chimiques des effluents tritiés existantes dans les rejets, l'ASN considère que les travaux du comité de suivi du plan d'action tritium peuvent à présent être clos. Le suivi des travaux de recherche encore en cours, notamment au sujet des effets biologiques du tritium et des risques sanitaires associés, peut désormais s'effectuer sous un autre format, par exemple lors de séminaires ou de journées dédiées à la recherche. L'ASN a ainsi demandé à l'IRSN d'organiser au premier semestre 2021 une journée « recherche » consacrée à ce sujet et d'y convier les parties intéressées, notamment les membres du Comité de suivi du plan d'action tritium.

Références

- AFNOR. 2011. Mesure de la radioactivité dans les effluents et rejets gazeux. NF M60-822-2 : détermination de l'activité du tritium dans la solution de piégeage des effluents ou rejets d'effluents gazeux échantillonnés par la technique de barbotage, décembre 2011.
- AFNOR. 2012. Mesure de la radioactivité dans les effluents et rejets gazeux. NF M60-822-1 : échantillonnage du tritium et du carbone 14 dans les effluents gazeux, décembre 2012.
- AFNOR. 2014. Mesure de la radioactivité dans les effluents et rejets gazeux. NF M60-822-0 : calcul des activités rejetées en tritium ou en carbone 14, avril 2014.
- AFNOR. 2019. Mesure de la radioactivité dans l'environnement NF M60-312-1 : détermination de l'activité volumique du tritium atmosphérique prélevé par la technique de barbotage de l'air dans l'eau, juin 2019.
- AFNOR. 2020. Mesure de la radioactivité dans l'environnement NF M60-824 : méthode d'essai pour l'analyse du tritium de l'eau libre et du tritium organiquement lié dans les matrices environnementales, novembre 2020.
- AFNOR. 2020. Mesures de la radioactivité dans l'environnement NF M60-780-0 : guide général pour l'échantillonnage, le conditionnement et le prétraitement de bioindicateurs dans l'environnement, mars 2020.
- AFNOR. 2020. Mesures de la radioactivité dans l'environnement NF M60-780-1 : guide général pour l'échantillonnage, le conditionnement et le prétraitement de bioindicateurs du milieu terrestre, mars 2020.
- AFNOR. 2020. Mesures de la radioactivité dans l'environnement NF M60-780-2 : guide général pour l'échantillonnage, le conditionnement et le prétraitement de bioindicateurs du milieu dulçaquicole, mars 2020.
- AFNOR. 2020. Mesures de la radioactivité dans l'environnement NF M60-780-3 : guide général pour l'échantillonnage, le conditionnement et le prétraitement de bioindicateurs du milieu marin, mars 2020.
- AGIR. 2007. Rapport review of risk from tritium.
- Areva. 2013a. Mesure des différentes formes chimiques du tritium dans la cheminée UP2-800. Note technique AREVA HAG 0 0610 12 20561.
- Areva. 2013b. Mesure des différentes formes du tritium dans les effluents organiques liquides du site AREVA. NC La Hague. Note technique AREVA DIR P NT 13-00005.
- Areva. 2013c. Mesure du tritium libre et lié dans les matrices biologiques. Note technique AREVA HAG 0 0610 12 20607 : inter-comparaison IRSN/LRC.
- Areva. 2017. Caractérisation des formes physico-chimiques du tritium rejeté par voie gazeuse. Note technique DSSEP RE ENV 2017-8135.
- ASN. 2010a. Livre Blanc du tritium. Disponible sur : www.asn.fr/sites/tritium/.
- ASN. 2010b. Livre Blanc du tritium – Mise en œuvre du plan d'action CODEP-DEU-2010-055081.
- ASN. 2011. Value of the radiation weighting factor (w_R) for tritium. CODEP-DEU-2011-025595.
- ASN. 2014. Livre Blanc de l'ASN – Comité de suivi du plan d'action tritium – Demande d'un rapport final. CODEP-DEU-2014-008566.
- ASN. 2016a. Spéciation des effluents tritiés, recherche du tritium sous forme organiquement lié (TOL). CODEP-DEU-2016-000981.
- ASN. 2016b. Spéciation des effluents tritiés, recherche du tritium sous forme organiquement lié (TOL). CODEP-DEU-2016-000999.
- ASN. 2019. Mise à jour du livre blanc du Tritium relative aux rejets d'effluents liquides et gazeux en tritium des INB et INBS entre 2014 et 2018, pp.282–283. Disponible sur : www.asn.fr/sites/tritium/.
- ASN. 2020. Recherche du tritium organiquement lié (TOL) dans les effluents liquides et gazeux du Service de Chimie Bio organique et de Marquage (SCBM) au CEA/Saclay. CODEP-DEU-2020-010101.
- Baglan N, Alanic G, Le Meignen R, Pointurier F. 2011. A follow up of the decrease of non-exchangeable organically bound tritium levels in the surroundings of a nuclear research center. *J. Environ. Radioact.* 102: 695–702.
- Bertho JM, Kereselidez D, Manens L, Culeux C, Magneron V, Surette J, Blimke M, Bertrand L, Wyatt H, Souidi M, Dublineau I, Priest N, Jourdain JR. 2019. HTO, tritiated amino acid exposure and

- external exposure induce differential effects on hematopoiesis and iron metabolism. *Sci. Rep.* 9: 19919. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-56453-4>.
- CEA. 2014. Recherche du tritium organiquement lié (TOL) dans les effluents du CEA. Rapport MR DPSN SPHE ENV RAP 1-2014 indice A.
- CEA. 2017. Recherche du tritium organiquement lié (TOL) dans les effluents du SCBM au CEA/Saclay. Rapport DPSN SPHE ENV RAP 2.
- CETAMA. 2013. Méthode 384 : analyse du tritium dans les matrices environnementales. Commission d'ETAbblissement des Méthodes d'Analyse – DEN/DRCP/CETAMA/NT/2013/03.
- COG (CANDU Owner Group) Report. 2015. Studies on the toxicity of tritium: Report on physiological markers of toxicity of low dose tritium and organically bound tritium in wild type mice. COG-16-3006.
- Duport P, Flürty-Hérard A, Rabin E. 1996. Effets biologiques et risques liés au tritium. In: Belot Roy M, Métivier H (Dir.). *Le tritium de l'environnement à l'homme*. Les Éditions de physique, 190 p.
- Eyrolle-Boyer F, Claval D, Charmasson S, Boyer P, Cossonnet C. 2015. Apparent enrichment of organically bound tritium in rivers explained by the heritage of our past. *J. Environ. Radioact.* 136: 162–168.
- Fiévet B, Pommier J, Voiseux C, Bailly du Bois P, Laguionie P, Cossonnet C, Solier L. 2013. Transfer of tritium released into the marine environment by French nuclear facilities bordering the English Channel. *Environ. Sci. Technol.* 47(12): 696–703.
- Gueguen Y, Priest ND, Dublineau I, Bannister L, Benderitter M, Durand C, Ebrahimian TG, Gregoire E, Grison S, Ibanez C, Legendre A, Lestaevl P, Roch-Lefevre S, Roy L, Tack K, Wyatt H, Leblanc J, Jourdain JR, Klokov D. 2018. In vivo animal studies help achieve international consensus on standards and guidelines for health risk estimates for chronic exposure to low levels of tritium in drinking water. *Environ. Mol. Mutagen.* 59(7): 586–594.
- ICRP. 2007. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. *Ann. ICRP* 37(2-4).
- ICRP. 2012. Value of the radiation weighting factor (w_R) for tritium, ref 4820-2477-3392.
- ICRP. 2016. Occupational intakes of radionuclides: Part 2. ICRP Publication 134. *Ann. ICRP* 45(3/4): 1–352.
- IRSN. 2009. Éléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium. Rapport DRPH/DIR/2009-18.
- IRSN. 2017. Actualisation des connaissances acquises sur le tritium dans l'environnement. Rapport 2017-004, 76 p.
- Kim SB, Farrow F, Bredlaw M, Stuart M. 2016. Changes in HTO and OBT activity concentrations in the Perch Lake aquatic ecosystem. *J. Environ. Radioact.* 165: 280–285.
- Le Dizès S, Aulagnier C, Maro D, Rozet M, Hébert D, Vermorel F, Voiseux C, Solier L, Godinot C, Fievet B, Laguionie P, Connan O, Cazimajou O, Morillon M. 2013. The VATO project: Development and validation of a dynamic transfer model of tritium in grassland ecosystem. *J. Environ. Radioact.* 171: 83–92.
- Little MP, Lambert BE. 2008. Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium. *Radiat. Environ. Biophys.* 47: 71–93.
- Mérignac C. 2017. Spéciation du tritium et du carbone 14 liés aux molécules organiques dans les effluents radioactifs liquides des Centres Nucléaires de Production d'Électricité. Thèse de Doctorat, Université Bretagne Loire, 155 p.
- Maro D, Vermorel F, Rozet M, Aulagnier C, Hébert D, Le Dizès S, Voiseux C, Solier L, Cossonnet C, Godinot C, Fiévet B, Laguionie P, Connan O, Cazimajou O, Morillon M, Lamotte M. 2017. The VATO project: an original methodology to study the transfer of tritium as HT and HTO in grassland ecosystem. *J. Environ. Radioact.* 167: 235–248.
- Martin S, Ségala C. 2021. Epidemiological study of mortality among workers exposed to tritium in France. *Radiat. Res.* 195(3): 284–292.
- Orano. 2019. Détermination de la teneur en tritium dans le résidu – La Hague atelier MDSB. Note technique DT_E_P 2019-13216.
- Paquet F, Métivier H. 2008. Les risques liés aux expositions du tritium sont-ils sous-évalués? *Radioprotection* 43: 193–201.
- Priest ND, Blimkie MS, Wyatt H, Bugden M, Bannister LA, Gueguen Y, Jourdain JR, Klokov D. 2017. Tritium (3H) retention in mice: Administered as HTO, DTO or as 3 H-labeled amino-acids. *Health Phys.* 112: 439–444.
- RIFE 11 (Radioactivity In Food and the Environment). 2006. Rapport. Report ISSN 1365-6414. Environment Agency (UK).
- Roch-Lefèvre S, Gregoire E, Martin-Bodiot C, Flegal M, Freneau A, Blimkie M, Bannister L, Wyatt H, Barquinero JF, Roy L, Bendadjaoud M, Priest ND, Jourdain JR, Klokov D. 2018. Cytogenetic damage analysis in mice chronically exposed to lowdose internal tritium beta-particle radiation. *Oncotarget* 9(44): 27397–27411.
- UNSCEAR. 2017. Sources, effects and risks of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the effects of Atomic radiation. UNSCEAR 2016 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Annex C: Biological effects of selected internal emitters – tritium. New York: United Nations.

Citation de l'article : Fayolle C, Fournier M, Plancque G, Reynal N, Riviere O. 2021. Rejets de tritium dans l'environnement et impact : évolutions récentes et perspectives. *Radioprotection* 56(2): 145–151