

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Le tritium dans l'environnement

Session 1. Aperçu d'ensemble des
connaissances

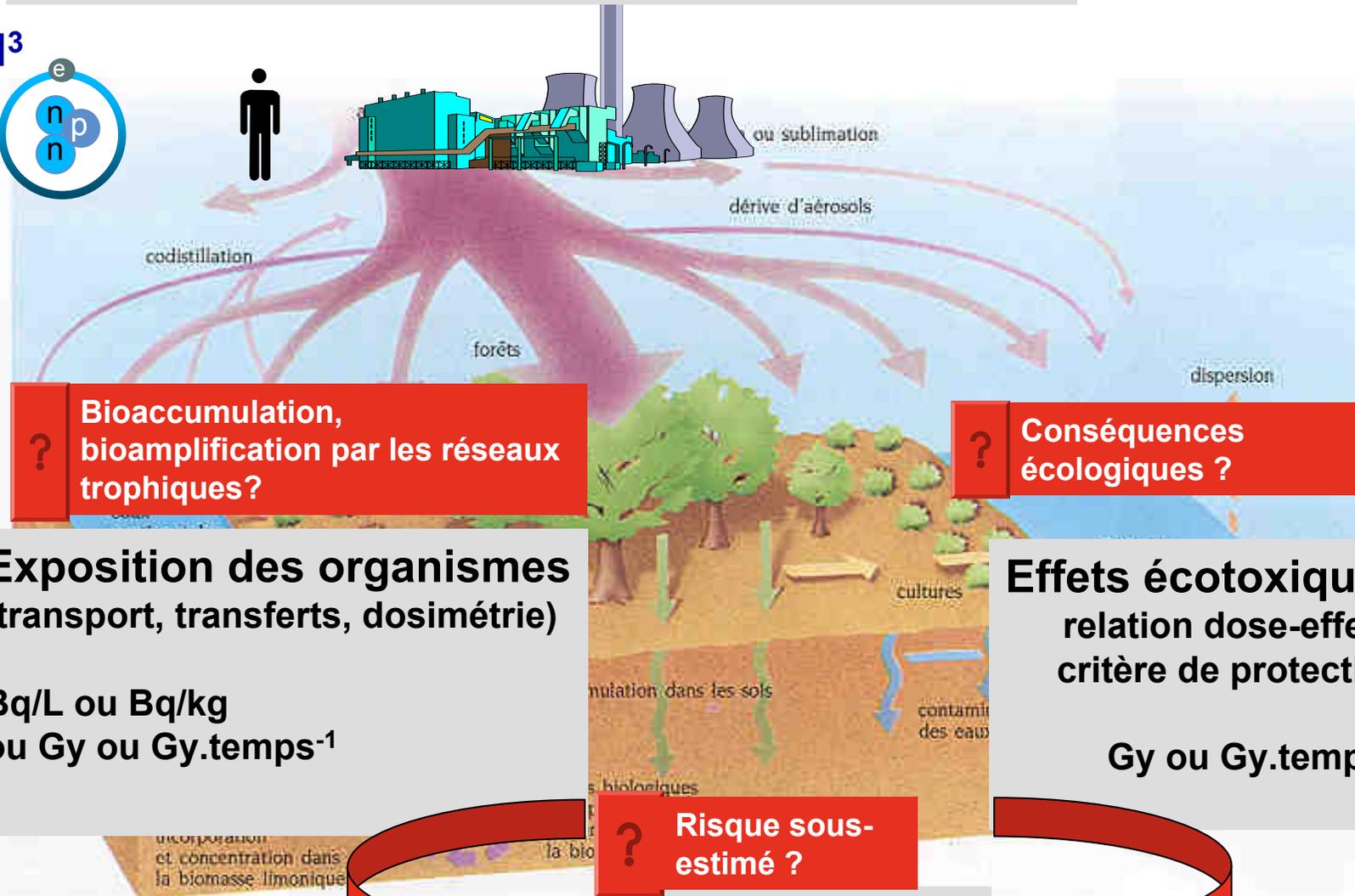
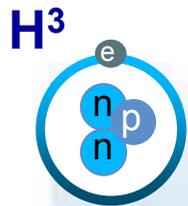
jacqueline.garnier-laplace@irsn.fr

Paris, le 23 septembre 2009



Connaissances pour estimer le risque tritium pour l'environnement

Quantités présentes ou rejetées // Formes physico-chimiques
Compartiments/écosystèmes récepteurs



? Bioaccumulation, bioamplification par les réseaux trophiques?

? Conséquences écologiques ?

Exposition des organismes
(transport, transferts, dosimétrie)

Bq/L ou Bq/kg
ou Gy ou Gy.temps⁻¹

Effets écotoxiques
relation dose-effets,
critère de protection

Gy ou Gy.temps⁻¹

? Risque sous-estimé ?

Risque
R = Exposition/Effets

Carte d'identité sommaire du tritium (1/2)

- L'un des trois isotopes de l'hydrogène (^1H , ^2H ou D, ^3H ou T), le seul radioactif (1g T = 359 TBq)



β^- - de faible énergie

(18 keV max // 5,7 keV moy) – 5 mm air // 0,56 μm eau

T_p (an) = 12,32 (disparition de 5,6% par an)

- Son origine naturelle: le moins abondant des isotopes de l'hydrogène

- ▶ En majorité issue des réactions nucléaires dans la haute atmosphère, entre les atomes d'azote et d'oxygène et le rayonnement cosmique de haute énergie

74 000 TBq/an ou 0,15 à 0,20 kg / an

Inventaire global 3,5 kg

- ▶ Production tellurique par réaction neutronique sur le Li^6

Quantité produite <<<< production atmosphérique

1 TBq = 10^{12} Bq

■ Ses origines artificielles :

▶ Essais militaires aériens d'armes nucléaires

186 000 PBq (1954-1963) ou 520 kg estimé aujourd'hui à 35 kg principalement dans les océans

▶ Emissions par les industries du cycle du combustible nucléaire civiles et militaires (fonctionnement normal et démantèlement)

14 PBq/an (actuellement)

En France: 2,33 g en 2007 avec les effluents gazeux et 36 g avec les effluents liquides (>>océans)

= 1/5 de la production atmosphérique

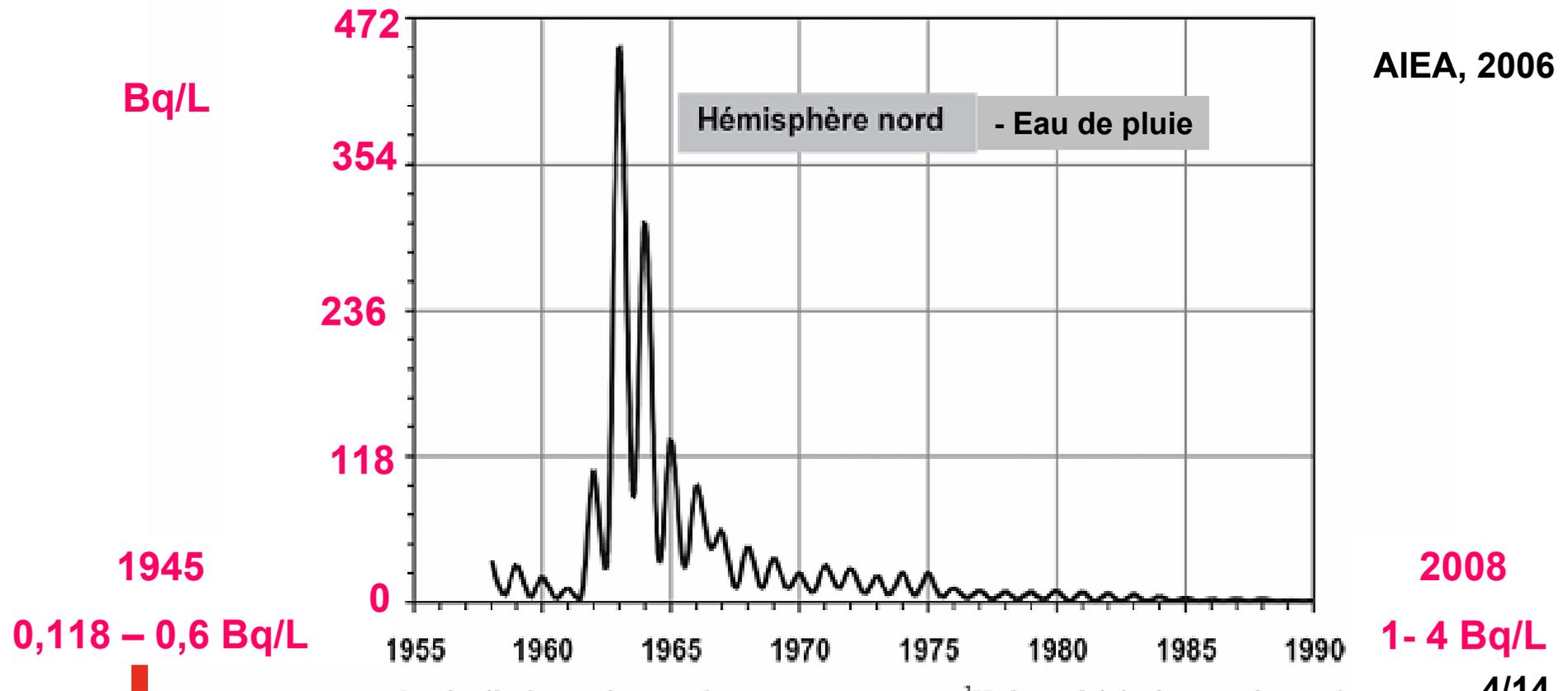
= 1/10 000 des essais nucléaires

▶ Emissions dues à son utilisation par d'autres industries (e.g., horlogères), en médecine nucléaire, industries biomédicales, activités de recherches

1 PBq= 10^{15} Bq

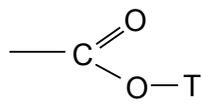
Dynamique du tritium à l'échelle du globe

- ▶ Extrême propension à s'échanger avec ^1H , notamment lorsqu'il est sous forme labile. Suit le cycle de l'eau.
- ▶ Temps de résidence dans les grands compartiments : stratosphère, atmosphère, biosphère, océans, eaux souterraines : piloté majoritairement par des processus physiques.
- ▶ Formes du tritium atmosphérique:
HTO liquide ou vapeur \gg HT (H_2 : 500ppb) \gg CH_3T (CH_4 : 1,745ppb).

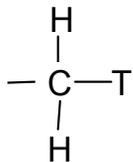


Dynamique du tritium chez les végétaux et les animaux

- ▶ Aux processus physico-chimiques viennent s'ajouter des mécanismes biologiques. Participe au métabolisme hydrominéral, s'incorpore à la biomasse (liquides intérieurs, biomolécules)
- ▶ Eau tritiée (HTO), gaz tritié (HT), tritium "organiquement" lié (OBT)
- ▶ Pour les composés de l'OBT selon la position et le type de liaisons chimiques entre l'hydrogène et les autres éléments constitutifs des molécules organiques



▶ **Fraction échangeable** : les atomes d'H périphériques liés à O, S, N sont remplacés par du tritium et sont facilement accessibles à de nouveaux échanges

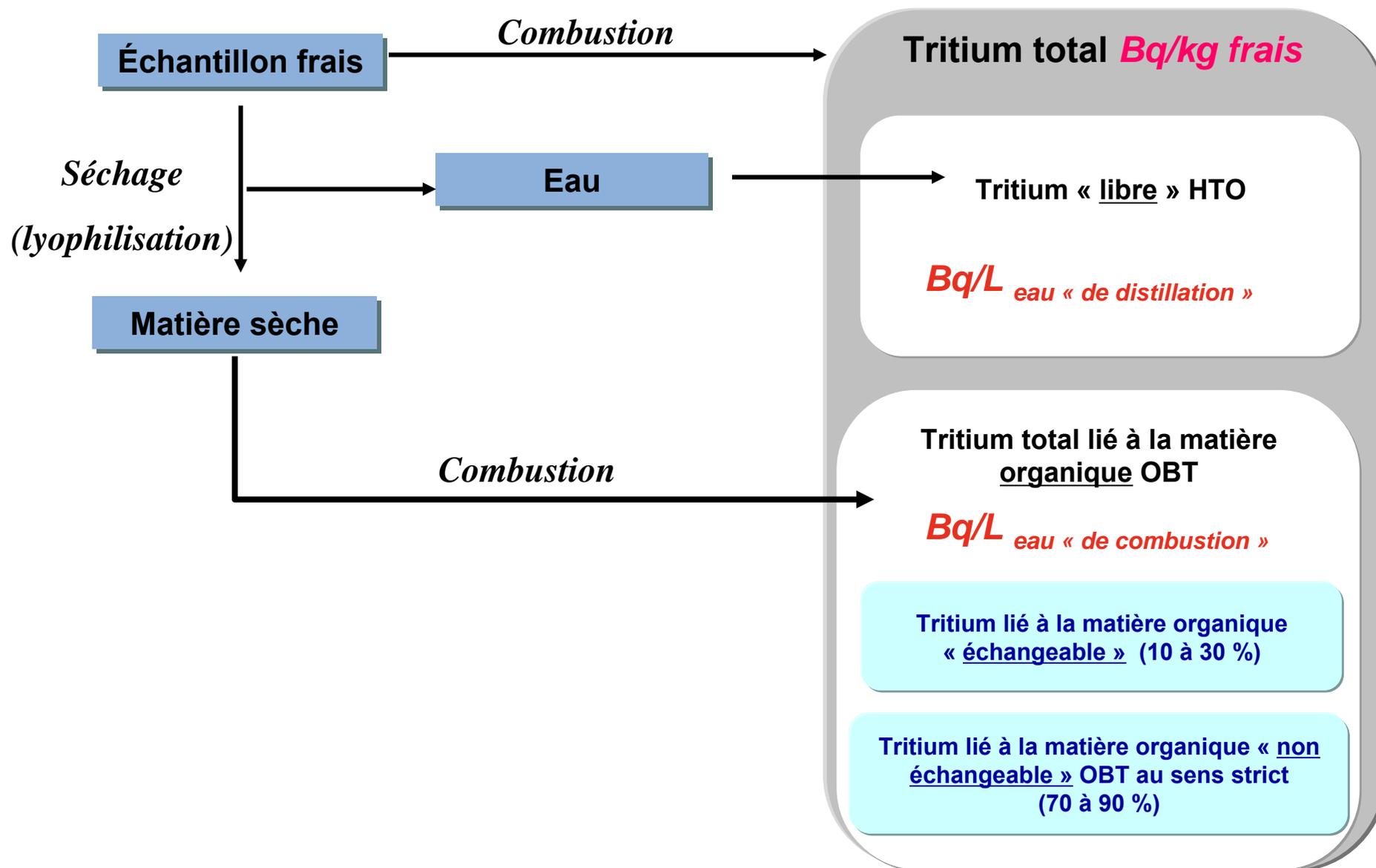


▶ **Fraction non échangeable** : le tritium est lié à un carbone de la biomolécule par une liaison covalente. La durée d'incorporation de tritium dépend du turn-over de la biomolécule : e.g., rapide pour des molécules du cycle énergétique, et plus lente pour des macromolécules type ADN

Tritium « bloqué dans les replis » de polymères de grande taille (ADN)

▶ **Effet isotopique**: réactions enzymatiques incorporent une quantité de T plus faible que celle de l'hydrogène stable. Liaison de T avec le carbone plus forte.

Définitions opérationnelles associées aux protocoles de mesure



Le tritium chez les végétaux



HT
CH₃T

Cinétiques
d'oxydation mal
connues

- Incorporation à la MO lors de la photosynthèse, et par transfert racinaire à partir de HTO du sol.
- Échanges permanents ($^3\text{H} / ^1\text{H}$) vers l'équilibre avec des cinétiques rapides (minutes, heures) :
 - ▶ lorsque le niveau de tritium ambiant ne varie pas, le tritium du végétal est à l'équilibre isotopique et la concentration du tritium organique OBT est à peu près équivalente à celle du tritium HTO (OBT/HTO= 0,9)
 - ▶ Lorsque le végétal a été exposé temporairement à un niveau de tritium plus élevé, la matière organique formée durant l'exposition incorpore du tritium qui reste dans le végétal sous forme OBT, alors que la concentration en tritium HTO décroît très rapidement pour se remettre en équilibre avec la vapeur d'eau ambiante (OBT/HTO>1 ⇒ Rémanence -litière des sols, cernes des arbres-
- Processus éminemment variables (niveau, durée, saison, jour-nuit, paramètres agro-climatiques : saison, humidité de l'air et du sol, pluie, types et stades végétatifs)

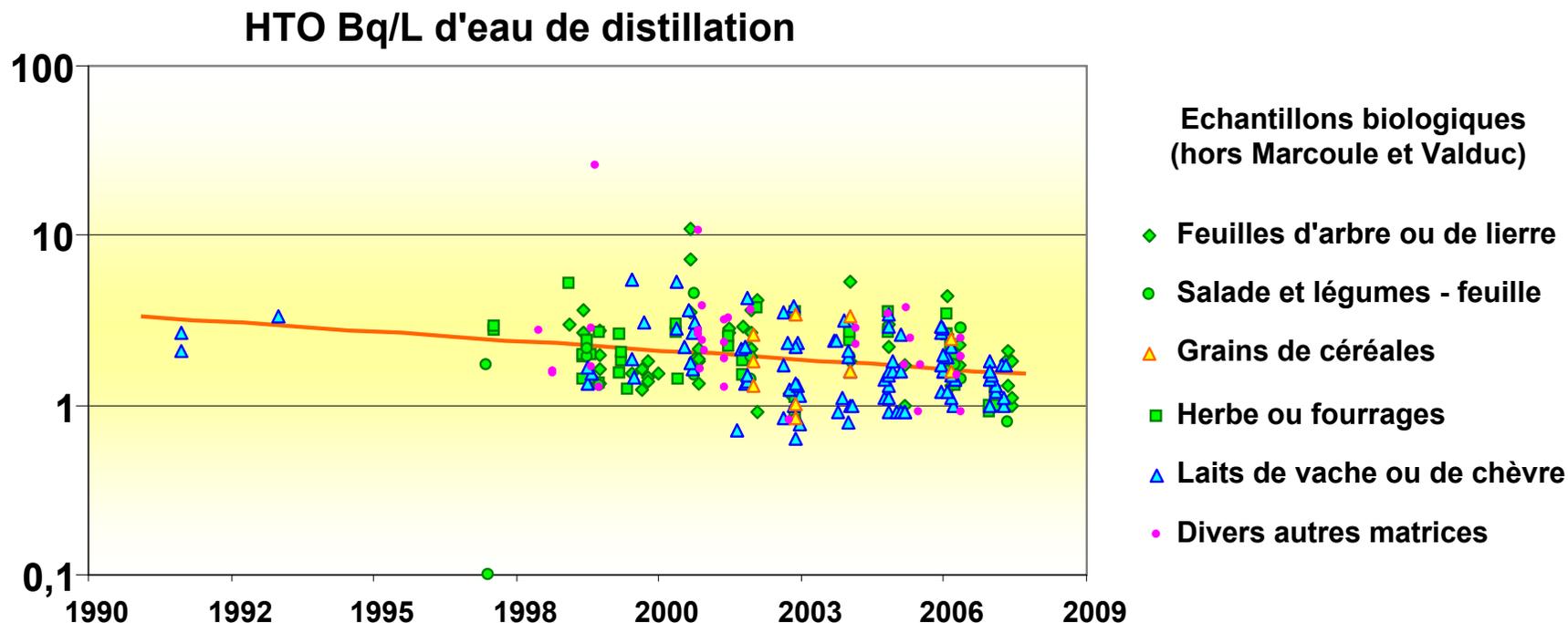
Le tritium chez les animaux terrestres et d'eau douce

- Peu de données au regard de la complexité et de la variabilité interspécifique//Le plus souvent relatives à des incorporations expérimentales ponctuelles (pas chroniques)
- Variabilité importante d'une espèce animale à l'autre, en fonction de l'âge de l'individu, de la position dans le réseau trophique (alimentation)
- Chez les vertébrés, FC entre 0,6 et 1 (équilibre rapide HTO et tritium libre). élimination rapide (qq jours) de l'essentiel du tritium ingéré (seulement qq % avec une période plus longue). Pour l'OBT, Tb de l'ordre de la dizaine de jours.
- Pas de phénomènes susceptibles d'engendrer à terme une "bioamplification" significative
- Le métabolisme de l'OBT par l'animal consommateur conduit en grande partie à la production d'eau tritiée, avec une cinétique fonction de la nature de la molécule organique tritiée. Taux d'incorporation du tritium organique > *via* la voie trophique comparativement à la voie directe.
- Les échanges mettant en jeu des formes organiques du tritium sont encore méconnus (e.g., poissons marins ou d'eau douce, invertébrés marin: $\frac{OBT_{organisme}}{HTO_{eau}} > 1$: origine et forme physico-chimique du tritium incorporé?

-> bioaccumulation par la voie alimentaire, bioaccumulation de molécules organiques tritiées ?

Tendance générale en France - échantillons terrestres (1/2)

Environ 400 échantillons biologiques. Incertitude de mesure en moyenne 36 %

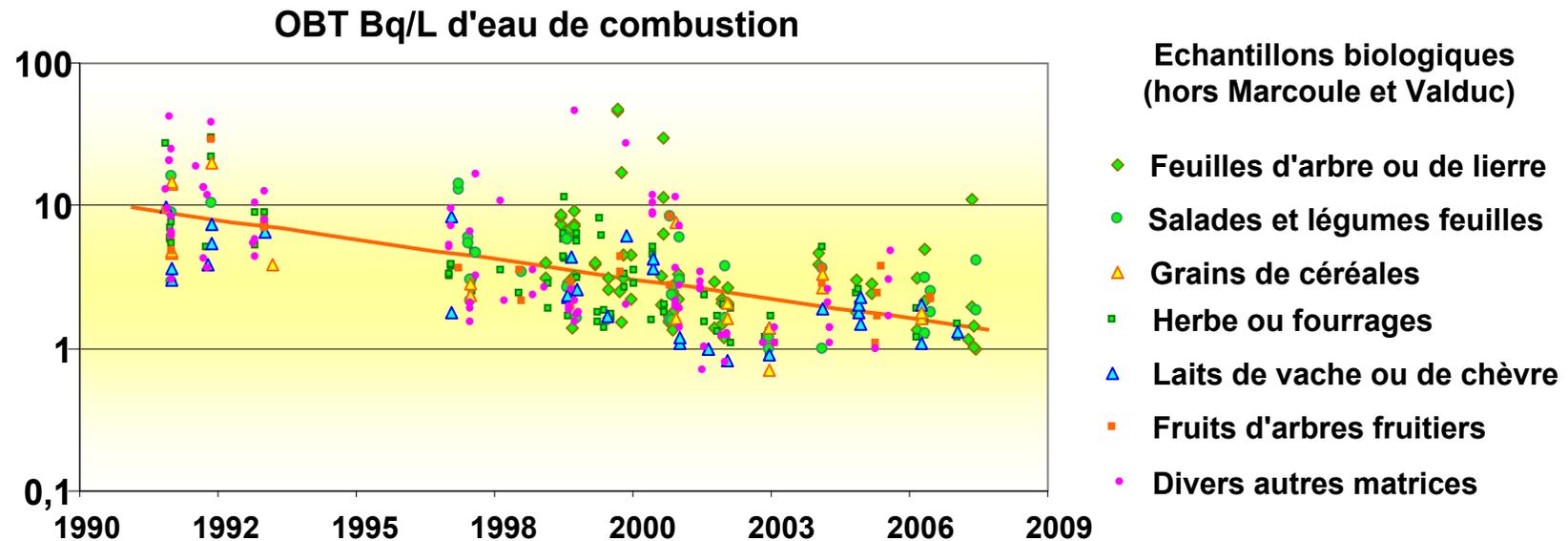


► le nombre de mesures < LD est en constante augmentation ; les valeurs supérieures au seuil de détection sont plus nombreuses pour le tritium OBT (90%) que pour le tritium HTO (64%) ;

► [HTO] diminue avec une période effective de l'ordre de 15 ans, équivalente à la période radioactive du tritium. La plupart des valeurs récentes sont de l'ordre de 1 à 2 Bq/L

Tendance générale en France - échantillons terrestres (2/2)

Environ 375 échantillons biologiques. Incertitude de mesure en moyenne 27 % pour OBT

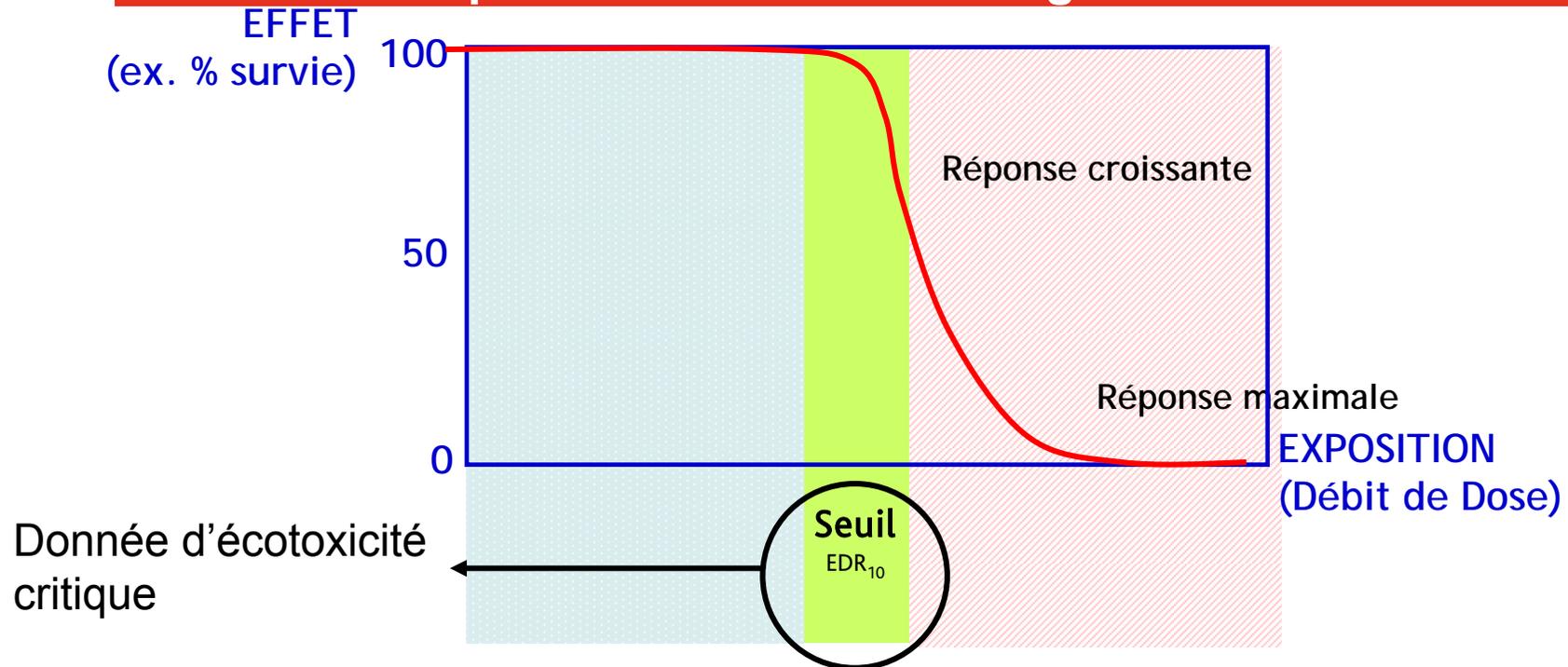


► [OBT] diminue avec une période effective de l'ordre de 5-6 ans ; quelques échantillons présentent encore en 2006-2007 des concentrations supérieures à 5 Bq/l mais la plupart des valeurs sont de l'ordre de 1 à 2 Bq/L

► Généralement pas de bioaccumulation du tritium:
-niveaux de tritium OBT décroissent plus vite que T_p
-niveaux de tritium des végétaux dans la gamme des valeurs des eaux de pluie.

► De rares échantillons (feuilles d'arbre) avec des niveaux de tritium OBT un peu plus élevés que la moyenne-> stations influencées par un niveau ambiant plus élevé actuel ou passé – les végétaux pérennes ont la possibilité de stocker le tritium organique dans leurs organes persistants (troncs et racines des arbres, racines et mat de prairie): restitution dans les parties aériennes au fil du temps ?

Effets écotoxiques du tritium sur les organismes non-humains



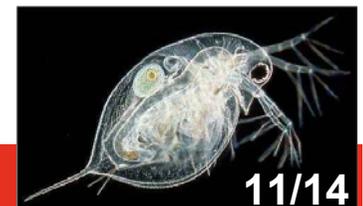
► Pas de donnée d'écotoxicité chez les végétaux.

► Certaines valeurs seuils estimées pour HTO et des espèces de mollusque et crustacé particulièrement faibles.

▪ *Mytilus edulis* stade œuf et adulte: dommages à l'ADN, dose-dépendant à partir de 13 $\mu\text{Gy/h}$, et conséquences cytogénétiques non dose-dépendantes significatives dès 1,3 $\mu\text{Gy/h}$; à partir de 1,7 $\mu\text{Gy/h}$ anomalie du développement des larves après 23 heures d'exposition à HTO. [Hagger *et al.* ; Jha *et al.* (2005)]



▪ *Daphnia magna* : anomalies de développement des larves s'aggravant au fil des générations à partir de 3 $\mu\text{Gy/h}$ [Gudkov et Kipnis (1996)]





**Bioaccumulation,
bioamplification par les réseaux
trophiques?**

- ▶ **Sur la base des connaissances disponibles et dans les conditions d'activités environnementales "normales" (territoire français) : pas de phénomène identifié comme susceptible d'engendrer à terme une "bioaccumulation" significative.**
- ▶ **Selon le contexte d'exposition, rémanence possible du tritium organique chez des végétaux antérieurement exposés à une contamination ambiante prolongée et/ou importante.**
- ▶ **Les facteurs de transfert chez les animaux terrestres ou aquatiques sont toujours inférieurs à l'unité, ce qui va dans le sens d'une absence de bioaccumulation du tritium dans les denrées d'origine animale.**
- ▶ **Les échanges mettant en jeu des formes organiques du tritium sont méconnus.**

**Chez les poissons marins ou d'eau douce, et chez des invertébrés marins, FC
OB T organisme/HTO eau supérieurs à 1 (e.g., estuaires et côtes anglaises)**

? processus d'assimilation et d'excrétion de ces composés organiques =f(nature et spéciation physico-chimique) ?

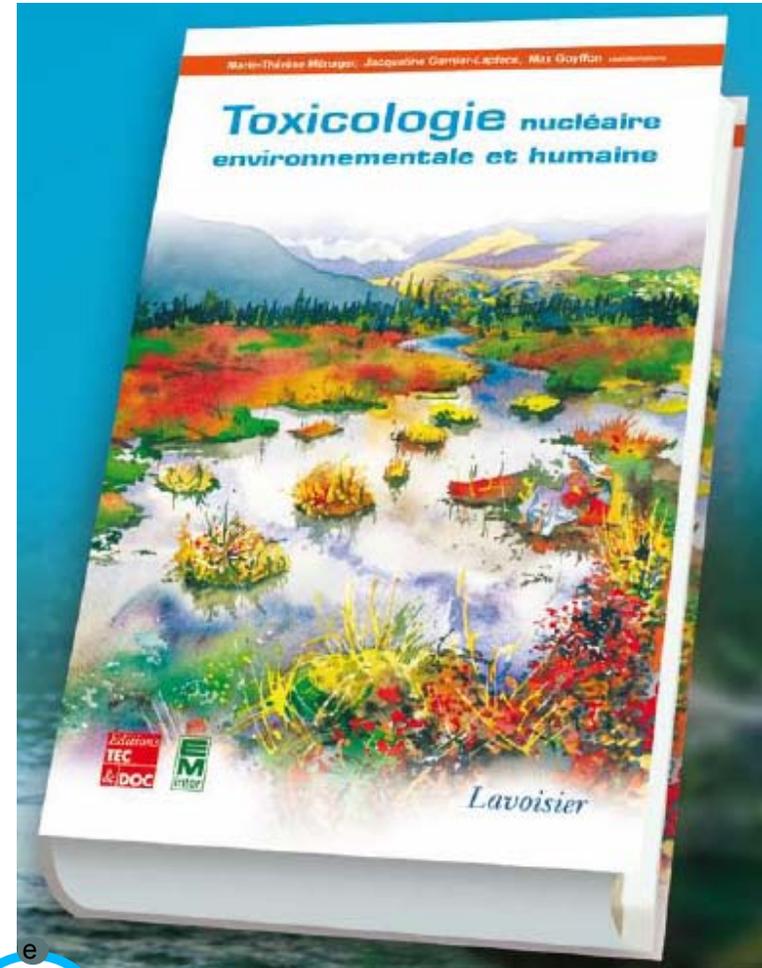


Conséquences écologiques ?

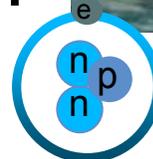
- ▶ **Données d'écotoxicité chronique de HTO rares; celles relatives aux invertébrés (eaux douce et marine) remettent en cause la valeur de 10 $\mu\text{Gy/h}$ actuellement recommandée en tant que critère de protection des écosystèmes (PROTECT, 2008).**

- ▶ Rapport IRSN/DEI 2009 à paraître
« Le tritium dans l'environnement :
synthèse critique des connaissances »
Fontenay-aux-Roses, 115 pages.

C. Adam-Guillermin, C. Antonelli, P. Bailly du Bois, K. Beaugelin-Seiller, P. Boyer, B. Fievet, J.C. Gariel, J. Garnier-Laplace, R. Gurrarian, S. Le Dizes-Maurel, D. Maro, M. Masson, O. Pierrard, P. Renaud, S. Roussel-Debet



H³



Chapitre 30

L. Lebaron-Jacob, J. Garnier-Laplace, B. Lopez, C. Adam-Guillermin, I. Dublineau, S. Roussel-Debet, C. Antonelli, B. Fievet, P. Bailly du Bois, M. Masson