

TRITIATION DU LAIT EN CONDITIONS D'EXPOSITION CHRONIQUE

Pierre LE GOFF¹, Philippe GUETAT¹, Michel FROMM²

¹ : CEA, DAM, VALDUC,

F-21120 Is sur Tille, France

² : UMR Chrono-Environnement

16 route de Gray F-25000 Besançon, France

pierre.legoff@cea.fr

Le tritium, comme isotope de l'hydrogène, est un radionucléide extrêmement mobile et capable d'être intégré dans à peu près toutes les molécules qui composent les êtres vivants, à commencer par l'eau. Ces propriétés, associées à une très faible radiotoxicité, alimentent les débats sur les effets du tritium sur la santé. « *Le tritium est-il capable de se concentrer dans des molécules/organes critiques pour les êtres vivants ?* ». La réponse à cette question fondamentale est nécessaire pour permettre de clore, par un consensus fort, les discussions sur les effets sanitaires potentiels du tritium.

Bien que les activités tritium rejetées dans l'atmosphère par le centre du CEA Valduc n'aient fait que diminuer depuis sa création [1], il est encore possible de mesurer un marquage de l'atmosphère, de l'eau et des organismes à proximité du site. De la recherche est conduite à Valduc pour l'amélioration continue de la connaissance de la circulation du tritium dans l'environnement et notamment son intégration dans le vivant (voir par exemple [2-7]). Dans ce même objectif et en cherchant à mettre en évidence les constantes qui caractérisent les transferts entre compartiments (de l'environnement mais aussi du vivant, en termes de familles de molécules le composant), nous avons étudié la tritiation de différentes matrices agricoles de l'environnement proche de Valduc, exposées chroniquement à du tritium.

Le lait est une matrice environnementale très régulièrement suivie dans les situations de rejets de radionucléides. C'est un aliment commun à tous les jeunes mammifères, qui contient l'ensemble des nutriments nécessaires à leur développement, à commencer par l'eau. C'est également une matrice qui est susceptible d'intégrer les dépôts sur de grandes étendues à l'échelle locale. C'est enfin un aliment abondant dans l'alimentation humaine, quelle que soit sa forme (lait à boire, yaourt, fromage, etc.). Dans notre étude, nous avons donc séparé l'eau libre et les principales fractions organiques du lait. On a ainsi pu comparer les rapports isotopiques de ces composés entre eux ainsi qu'avec les paramètres environnementaux associés (tritium atmosphérique, activité volumique de l'eau de boisson et marquage de l'alimentation).

Afin de s'assurer de la pertinence et la justesse de nos résultats, nous avons d'abord validé les procédés mis en œuvre dans notre étude environnementale et avons amélioré certains d'entre eux afin de réduire les incertitudes ou les biais associés [8]. Nous avons également mis en évidence une source de biais dans l'évaluation du rapport isotopique T/H, notamment lorsque la mesure de l'activité tritium d'un échantillon était faite via une oxydation catalytique [9]. Nous avons alors proposé une correction permettant la comparaison des rapports isotopiques entre des échantillons de nature différente.

Le tritium dans le vivant est essentiellement sous forme d'eau tritiée (HTO) et sous forme organique : Tritium Organiquement Lié (TOL ou OBT pour *Organically Bound Tritium*) [10]. On différencie dans le TOL deux fractions en fonction de la labilité du tritium lié à la matière organique.

Lorsque le TOL est susceptible de se mettre spontanément en équilibre isotopique avec les autres hydrogènes labiles à proximité (sous forme d'eau par exemple), il est qualifié d'échangeable (TOLe) [11]. Cela concerne les tritiums liés par des liaisons covalentes de faible énergie aux atomes d'azote, d'oxygène ou de soufre. Dans les autres cas, il s'agit généralement de tritium lié à des atomes de carbone. Cette liaison est plus stable et capable de perdurer jusqu'à la dégradation de la molécule organique. On qualifie alors cette fraction de non-échangeable (TOLne).

Expérimentalement, on distingue ces deux fractions dans les mesures en procédant à un rinçage isotopique de notre échantillon sec avec une grande quantité d'eau très faiblement tritiée [12]. La mesure de l'activité tritium de la matière sèche rincée est alors représentative du TOLne. Afin de prendre en compte la dilution isotopique du TOLne par l'hydrogène échangeable et de pouvoir ainsi comparer les rapports isotopiques T/H (activité Tritium sur quantité d'Hydrogène total) des différents TOLne, il est nécessaire de diviser l'activité tritium mesurée par la contribution de l'hydrogène non-échangeable à l'hydrogène total de la matrice considérée (pour plus de détails, voir [9]).

Afin d'améliorer la connaissance sur les mécanismes d'incorporation du TOLne dans le vivant, nous avons étudié la répartition du tritium dans les principaux constituants du lait à savoir l'eau, la matière grasse, les protéines et le lactose. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 1. L'activité volumique de l'eau libre et des eaux de combustions des différentes fractions du lait (corrigée tel que décrit plus haut pour comparer les rapports T/H) varient du simple au double, allant de 20 Bq L⁻¹ (dans la matière grasse du lait) à 42 Bq L⁻¹ (dans les caséines), l'activité moyenne étant de 30 Bq L⁻¹. Cela montre que, même en situation d'exposition chronique, le tritium n'est pas réparti de façon homogène dans le vivant, y compris au sein des différentes molécules organiques qui le composent.

Tableau 1 : Résultats de l'étude de la tritiation d'un lait prélevé dans la Ferme A

Constituants :	Fraction massique dans du lait frais	% massique d'hydrogène	% hydrogène non-échangeable	Contribution (%) à l'activité tritium du lait frais	
				TOLe	TOLne
Eau libre	87,5 %	11,1	0,0	90,5%	
Matière organique :				TOLe	TOLne
• Matière grasse	3,6 %	12,5	96,6	0,1%	3,1%
• Lactose	4,8 %	6,5	63,6	1,0%	2,3%
• Caséines	2,6 %	7,6	65,1	0,5%	2,0%
• Protéines sériques	0,6 %	7,5	63,9	0,2%	0,3%
Total	11,6 %			1,8%	7,7%

Nous avons également étudié le marquage tritium dans les 4 fermes laitières qui entourent le centre de Valduc (leur position par rapport au site de Valduc est indiquée dans le Tableau 2) afin de mettre en évidence les facteurs qui sont à l'origine des différences mises en évidence. Au cours de 2 campagnes, les activités tritium de l'eau d'abreuvement, des aliments composant la ration alimentaire ainsi que celle du lait ont été mesurées dans chaque ferme et comparées à l'activité atmosphérique ambiante mesurées dans les stations

environnementales voisines. Les résultats sont présentés dans le Tableau 3.

Tableau 2 : Position des fermes étudiées par rapport au centre de Valduc

	Orientation par rapport à Valduc	Distance de Valduc (km)
Ferme A	Nord	6,1
Ferme B	Sud-Est	5,2
Ferme C	Sud-Sud-Ouest	6,1
Ferme D	Nord-Nord-Ouest	4,3

Tableau 3 : Activité volumique (Bq L^{-1}) et activité volumique corrigée (Bq L^{-1}) mesurées dans les 4 fermes étudiées

		Eau d'abreuvement (Bq L^{-1})	TOLne Aliments (Bq L^{-1} corrigée)	Lait frais (Bq L^{-1} de lait frais)	Eau libre du lait (Bq L^{-1})	Contribution au TOLne du lait (%)		
						Matière grasse	Caséines	MS serum acide*
Ferme A	2011	28,0	76,7	42,5	41,9	51%	19%	30%
	2013	48,5	52,2	21,6	21,2	47%	19%	34%
Ferme B	2011	2,9	29,6	4,5	2,9	21%	40%	39%
	2013	6,6	30,8	13,2	13,6	47%	13%	40%
Ferme C	2011	2,8	33,1	4,6	2,8	29%	31%	40%
	2013	6,1	41,1	4,2	3,6	61%	16%	23%
Ferme D	2011	11,0	46,5	11,7	11,0	61%	19%	21%
	2013	13,5	35,4	14,9	14,5	41%	23%	36%

* : la matière sèche (MS) du sérum est essentiellement composée de lactose (48 g L^{-1} de lait frais) et de protéines sériques (6 g L^{-1} de lait frais).

Compte tenu de la répartition des fermes autour du centre de Valduc, les différences des activités volumiques observées entre les laits des différentes fermes sont expliquées par les variations des expositions des fermes aux influences de Valduc liées à leur localisation géographique. Dans tous les laits prélevés, la contribution de l'eau libre à l'activité tritium du lait est prépondérante comme le montre la faible variation de l'activité du lait frais total par rapport à celle de l'eau libre. Malgré la pondération due à l'abondance en hydrogène non-échangeable des matières grasses et à la richesse du lait en matière grasse, des variations sensibles sont observées dans la contribution des principales fractions organiques au TOLne du lait. Pourtant, les exploitations suivies ont des compositions de ration alimentaire très semblables (avec le maïs d'ensilage qui représente plus de 80 % de la matière sèche ingérée pour 3 des 4 exploitations) et deux fermes (B et C) présentent des activités tritium similaires, que ce soit dans l'eau d'abreuvement ou dans la nourriture des cheptels suivis. D'autres facteurs influent donc sur l'activité tritium du lait et sur la répartition du tritium dans le lait.

Le suivi de la ferme A pendant 3 mois a permis de mettre en évidence certaines de ces influences. En effet, alors que l'activité volumique de l'eau d'abreuvement ainsi que le TOLne des aliments étaient stables, les activités volumiques des fractions organiques et de l'eau libre ont fluctué d'un facteur allant jusqu'à 4 (caséines : de $9,1$ à $38,2 \text{ Bq L}^{-1}$ d'eau de combustion corrigée). La seule source de tritium présentant une forte variabilité durant notre suivi est le tritium atmosphérique sous forme d'HTO (suivi à l'aide d'un barboteur implanté dans l'étable). L'évolution des activités tritium de la vapeur d'eau atmosphérique, des caséines et de l'eau libre du lait sont corrélées (tests de Spearman $< 0,05$). Si on considère que les activités tritium de la matière grasse et de la matière sèche du sérum sont décalées dans le temps (avec un décalage respectivement de 15 jours et 7 jours), là aussi le test de Spearman permet de conclure à une corrélation avec un risque de se tromper inférieur à 5%. Compte tenu de la faible contribution de la vapeur d'eau aux apports en eau d'une vache, on suppose que cette influence de la vapeur d'eau dans les constituants du lait est également liée à un marquage indirect de l'alimentation (TOLe et eau libre).

Nous avons ainsi montré la bonne corrélation entre l'eau atmosphérique, l'eau d'abreuvement et l'eau libre du lait ainsi que celle, plus nuancée, entre les activités tritium de la matière sèche du bol alimentaire et des fractions organiques du lait. Dans les principaux constituants du lait, les variations de ces rapports isotopiques dépendent donc principalement de paramètres environnementaux.

Compte tenu des quantités d'hydrogènes qui circulent dans l'environnement (notamment et principalement sous forme d'eau), les effets d'éventuels mécanismes de concentration dans les molécules organiques tritiées ne sont pas observables en conditions environnementales. Ainsi, dans une situation d'exposition chronique, le rapport isotopique Tritium/Hydrogène reste dans le même ordre de grandeur quel que soit le compartiment de l'environnement qu'on observe.

L'ensemble de nos résultats tendent à confirmer qu'il n'est pas justifié de modifier l'évaluation de la radiotoxicité globale du TOL dont la valeur est déjà conservatrice [13].

Références

1. Guétat, P., et al., *Retour d'expérience sur la gestion des déchets et rejets tritiés*, in *Livre Blanc Tritium*, ASN, Editor. 2010: Paris. p. 149-154.
2. Boyer, C., et al., *Etude du transfert du tritium aux végétaux*, in *Livre Blanc Tritium*, ASN, Editor. 2010: Paris. p. 211-214.
3. Boyer, C., et al., *Variations of conversion rate from Tissue Free Water Tritium to Organically-Bound Tritium in lettuces continuously exposed to atmospheric HT and HTO*. Radioprotection, 2009. **44**: p. 671-676.
4. Guétat, P., *Key mechanisms for tritium transfer in the terrestrial environment*. Radioprotection, 2013. **48**(3): p. 367-389.
5. Guétat, P., et al., *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*. Radioprotection, 2013.
6. Vichot, L., et al., *Organically Bound Tritium (OBT) for various plants in the vicinity of a continuous atmospheric tritium release*. Journal of Environmental Radioactivity, 2008. **99**: p. 1636-1643.
7. Vichot, L., et al., *Organically bound tritium in the environment: First investigation of environmental survey in the vicinity of a french research centre*. Fusion technology, 2008. **54**: p. 253-256.
8. Le Goff, P., et al., *Measurement of tritium in the free water of milk - Spotting and quantifying some biases and proposing ways of improvement*. Journal of Environmental Radioactivity, 2014. **127**: p. 1-10.
9. Le Goff, P., et al., *Isotopic fractionation of tritium in the environment*. Environment international, 2014. **65**: p. 116-126.
10. Elwood, J., *Ecological aspects of tritium behavior in the Environment*. Nuclear safety, 1971. **12**: p. 326-337.
11. Diabaté, S. and S. Strack, *Organically bound tritium*, in *Health physics*. 1993. p. 698-712.
12. Pointurier, F., et al., *An improved method for the determination of low-level non-exchangeable organically bound tritium in biological samples*. Radioprotection, 2002. **37**: p. C1_967-C1_972.
13. Le Goff, P., *Le tritium de l'Ecosystème à l'Homme - Etude des mécanismes et des constantes qui régissent les équilibres et différentes voies de transfert*, in *UFR Sciences et Techniques*. 2014, Université de Franche-Comté: Besançon (25). p. 276.