IRSN
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Le tritium : caractéristiques et comportement dans l'environnement

Ph. Renaud

Réunion des CLI d'Iter et de Cadarache du 1er juin 2012

Caractéristiques fondamentales du tritium

Le tritium est un des trois isotopes de l'hydrogène

Protium	^{1}H (hydrogène)		99,98 %	stable
Deutérieum	^{2}H ou D		0.02 %	stable
Tritium	^{3}H ou T	1 ^{3}H cosmogénique pour 10^{18} ^{1}H (définition de l'UT)		radioactif

- Émetteur β^- de faible énergie : 18 keV, Période radioactive : 12,4 ans

L'hydrogène est un constituant de l'eau (H2O)

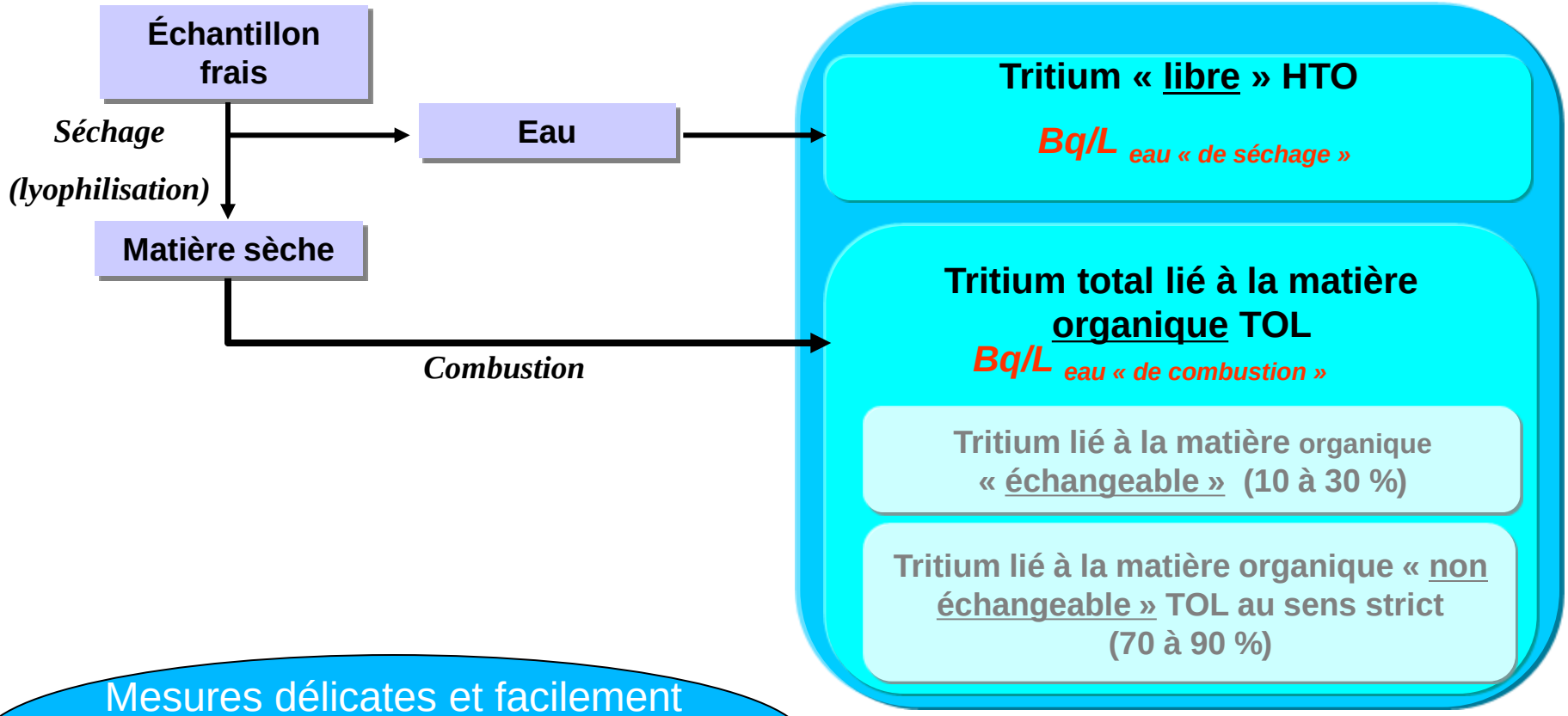
- Le tritium présent dans la molécule d'eau est le tritium libre (HTO)
- Ce tritium « suit » l'eau

L'hydrogène est un constituant majeur de la matière organique

- Le tritium organiquement lié (TOL)
- Ce tritium « suit » la molécule organique à laquelle il est lié

Une seule unité qui permet toutes les comparaisons :

le Bq/L



Mesures délicates et facilement soumises à des biais de protocole

Origine et évolution du tritium atmosphérique depuis 1945

- **Origine naturelle :**

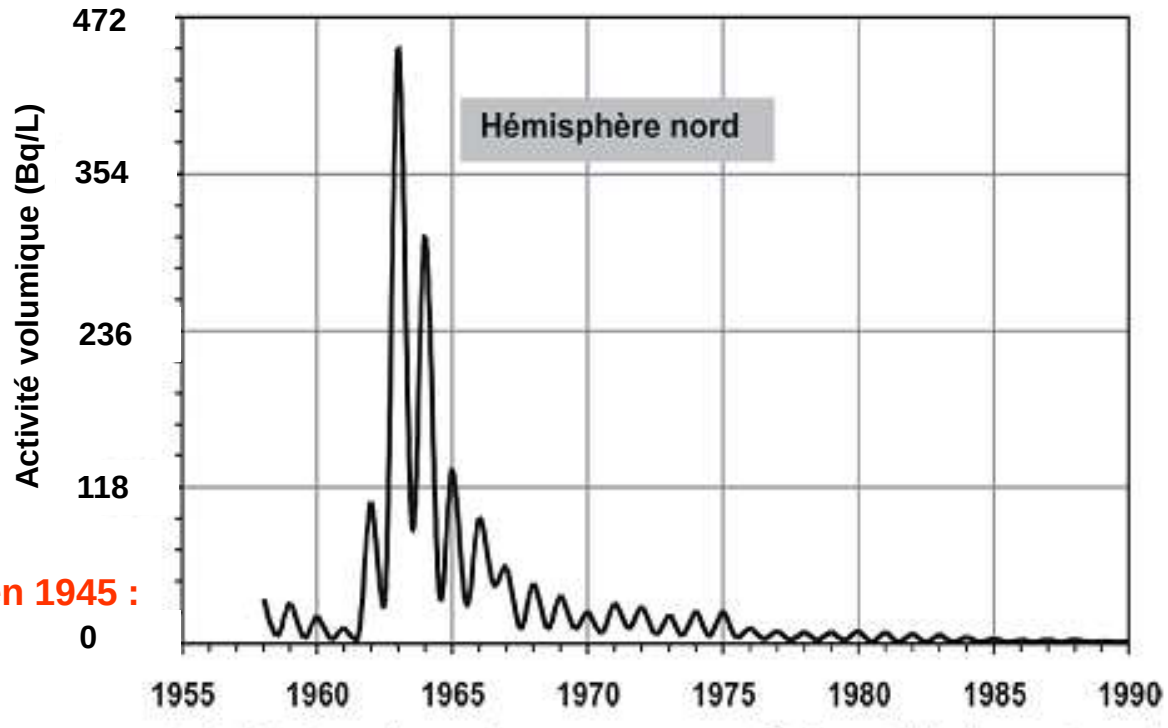
  Action des rayonnements cosmiques sur l'air ⇒ 74 PBq/an

- **Origine artificielle :**

  Explosions d'armes nucléaires ⇒ 186 000 PBq (1954-1963)

  Industrie nucléaire civile et militaire ⇒ 14 PBq/an (actuellement)

Rejets annuels français = 1/5ème du cosmogénique = 1/10 000ème des essais nucléaires

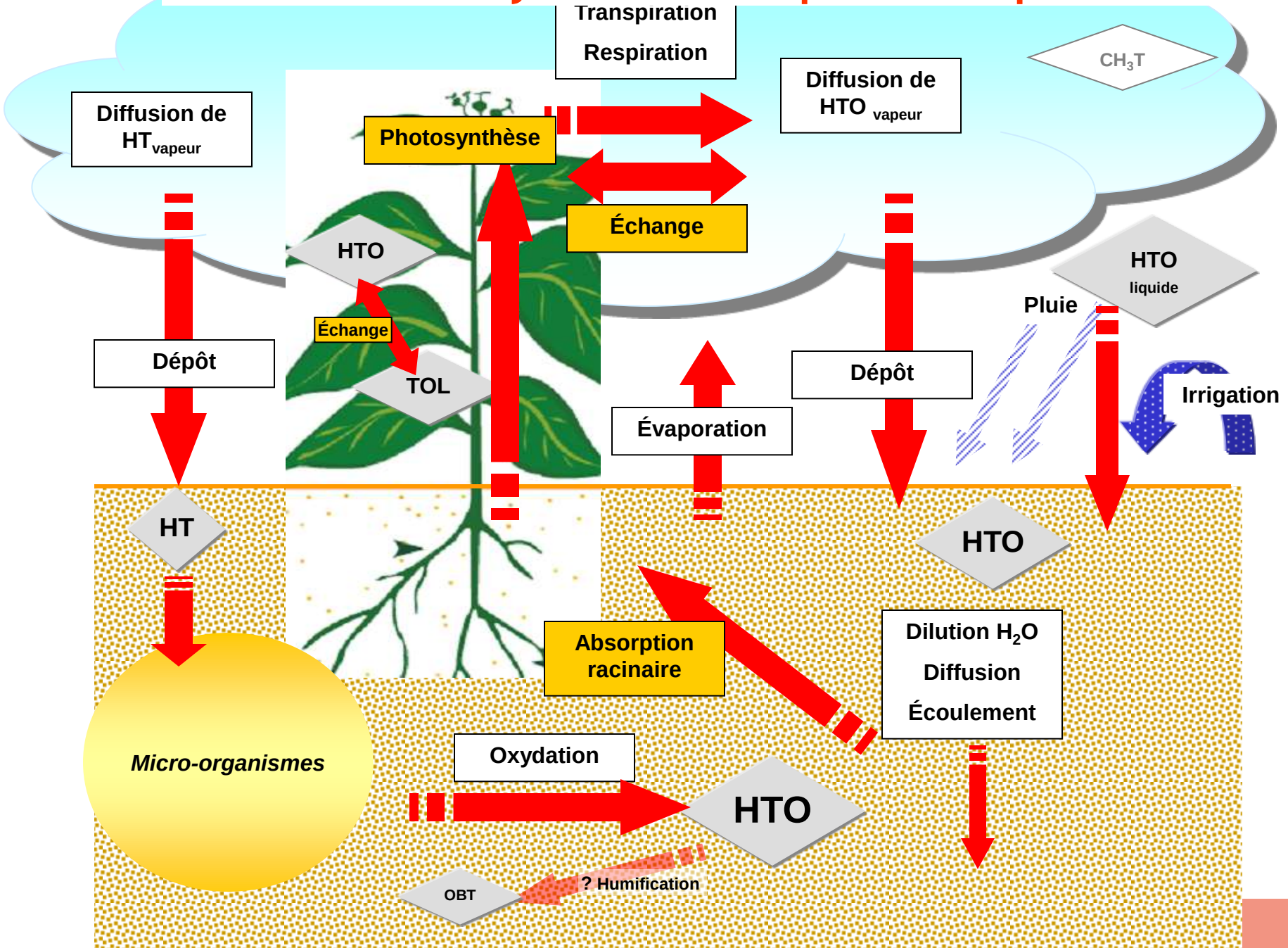


Source AIEA

Bruit de fond en 1945 :
0,1- 0,6 Bq/L
100% naturel

Bruit de fond en 2012 :
< 3 Bq/L

Tritium dans le système atmosphère-sol-plante…



Comportement dans l'air et les végétaux

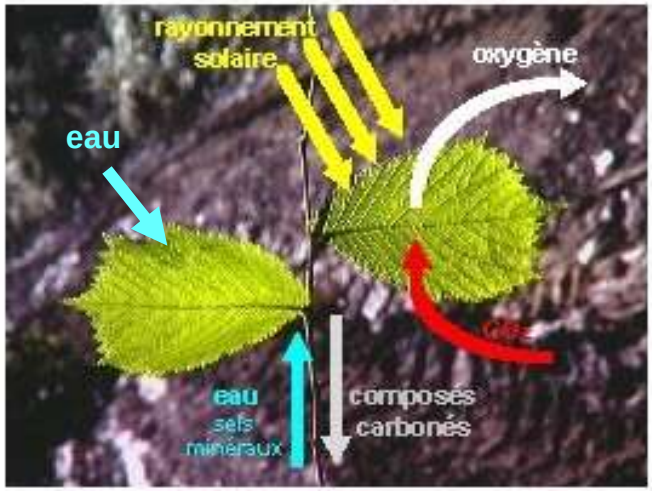
- **Quelle est l'activité en tritium de l'air ?**

→ Quelle est l'activité de l'eau de l'air ?

→ Combien y a-t-il d'eau dans l'air ?

- **Quelle est l'activité en tritium d'une plante ?**

PHOTOSYNTHESE



$6\,[Co_2 + H_2O] \rightarrow C_6H_{12}O_6 + 6\,O_2$
lumière

- Activité tritium = HTO + TOL
- Quelle est l'activité en HTO d'une plante ?

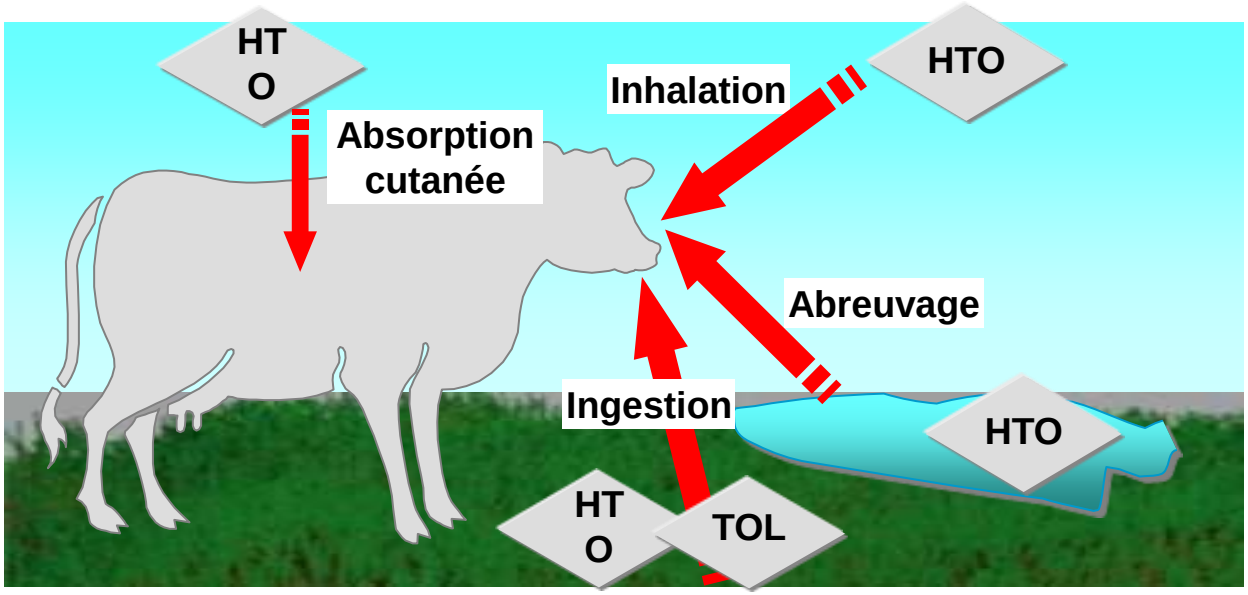
→ l'activité de HTO dans l'air actuellement

Equilibre rapide

- Quelle est son activité en TOL ?

→ l'activité moyenne de HTO dans l'air lorsqu'elle a poussé

Le tritium dans les animaux



Incorporation de HTO

- Prés de 100% du HTO incorporé, est assimilée rapidement et transférée à l'ensemble de l'organisme,
- Une petite fraction (<1%) du HTO assimilé se lie à la matière organique (devient TOL)

Ingestion de TOL

- La fraction de TOL ingérée est essentiellement assimilée sous la forme d'eau tritiée ou de petites molécules organiques
- Quelques % (4%) du TOL assimilé reste incorporée à la matière organique

Élimination HTO et TOL

- 97% de (TOL+HTO) est éliminé avec une période de quelques jours : urine, fèces, vapeur d'eau exhalée et transpirée
- 3% avec une période de quelques dizaines à quelques centaines de jours

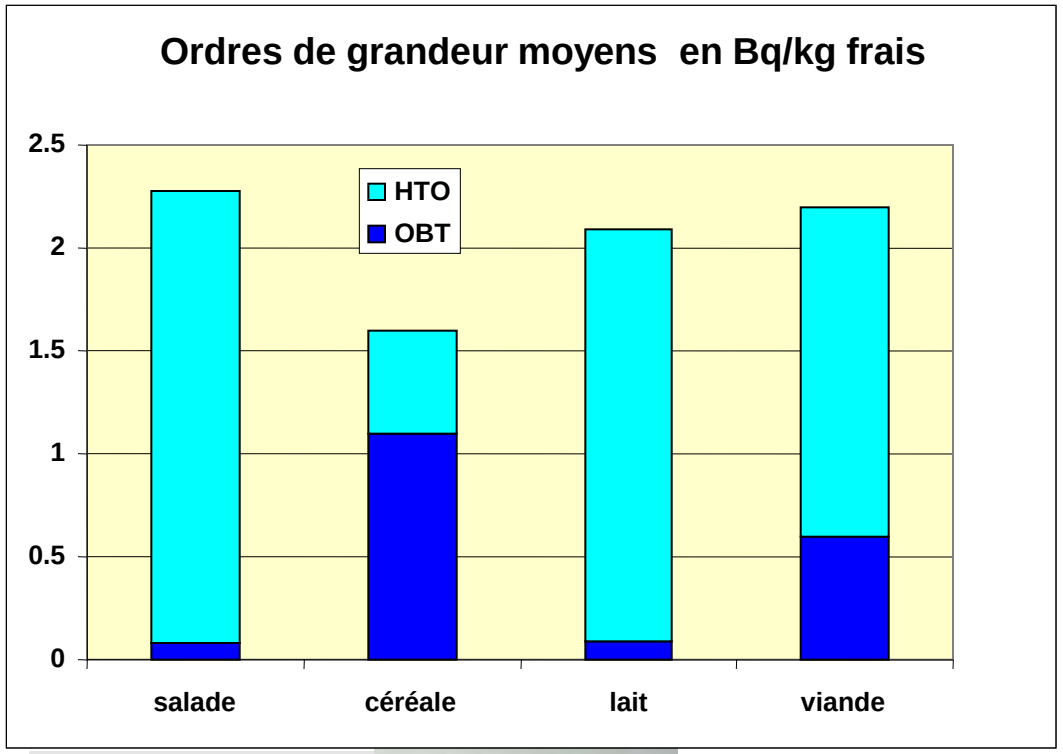
Tritium en « Bq/kg frais « dans les denrées terrestres

Concentrations en HTO et TOL

< 2 Bq/L d'eau de distillation ou de combustion

(bruit de fond, hors influence d'une installation nucléaire)

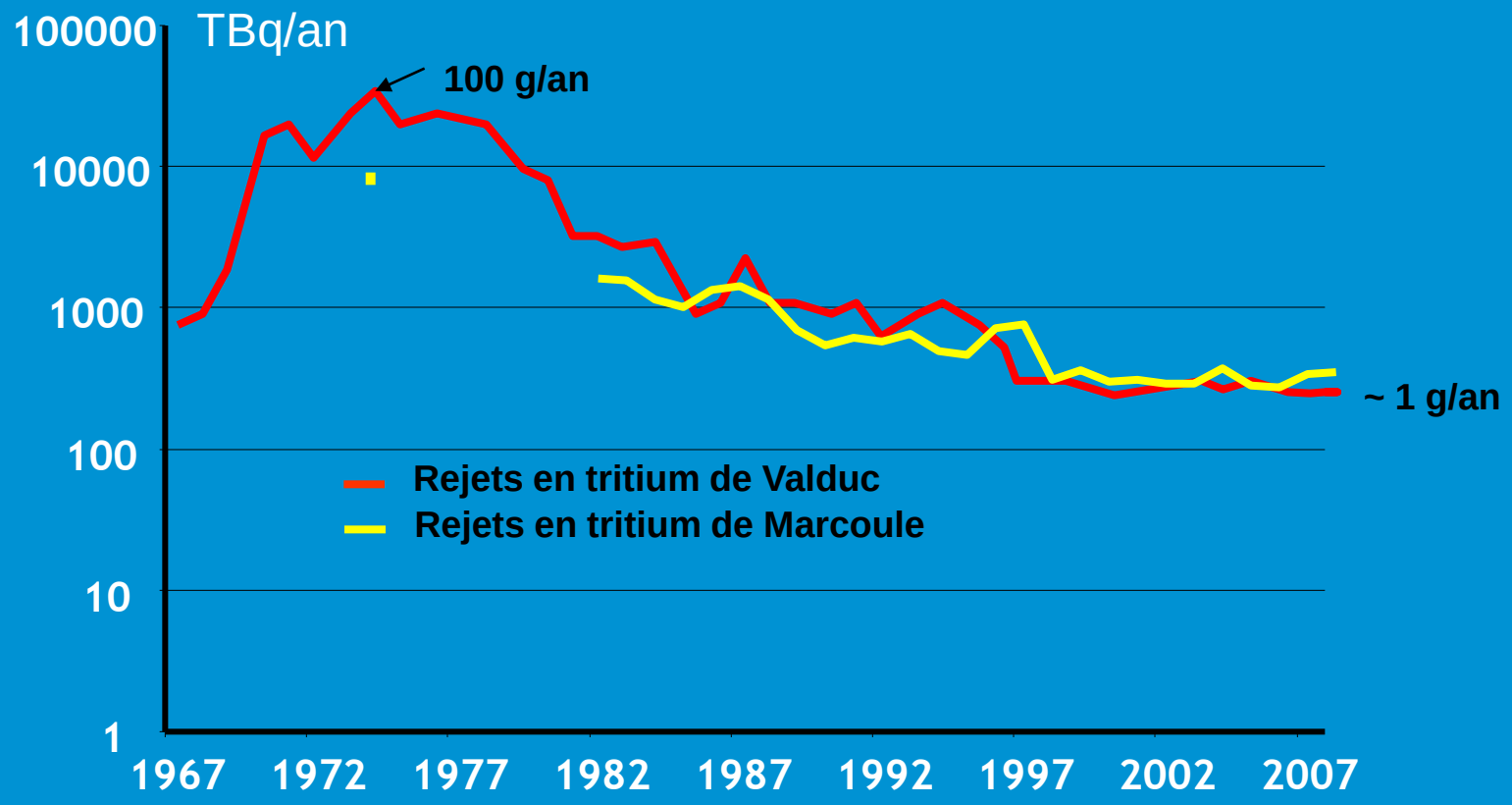
En moyenne : < 2,5 Bq/kg frais



L'activité du tritium exprimée par en Bq/kg frais dépend de la teneur en eau du produit

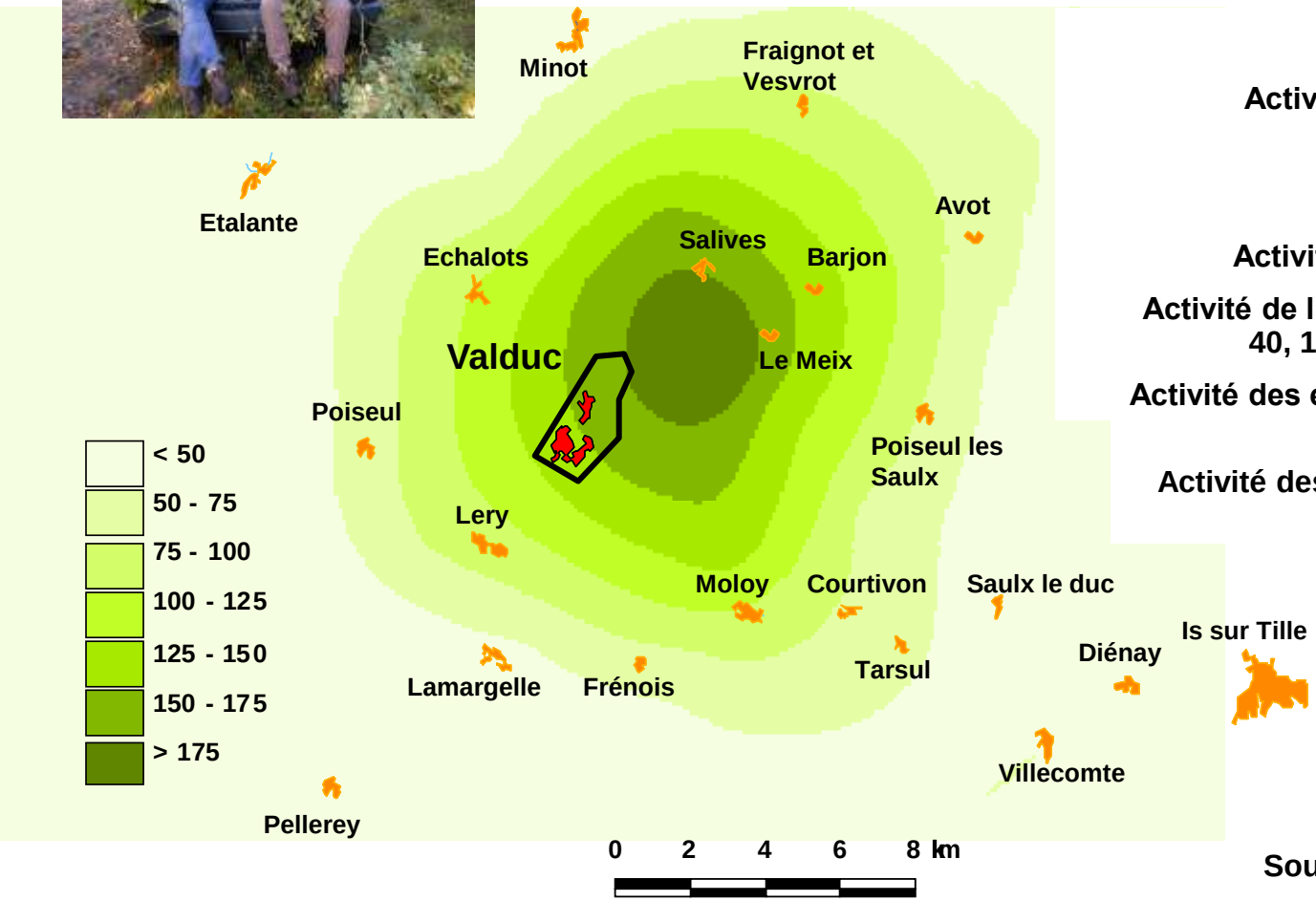
IRSN
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Cas de Marcoule et Valduc



Valduc : un net marquage en tritium de l'environnement

Activités de tritium lié aux feuilles de chêne (Bq/l d'eau de combustion) en 2001



Rejets 2001 : 300 TBq

Activité de l'air : 0,04 à 2 Bq/m3

Rejets 2007 : 250 TBq

Activité de l'air : jusqu'à 3 Bq/m3

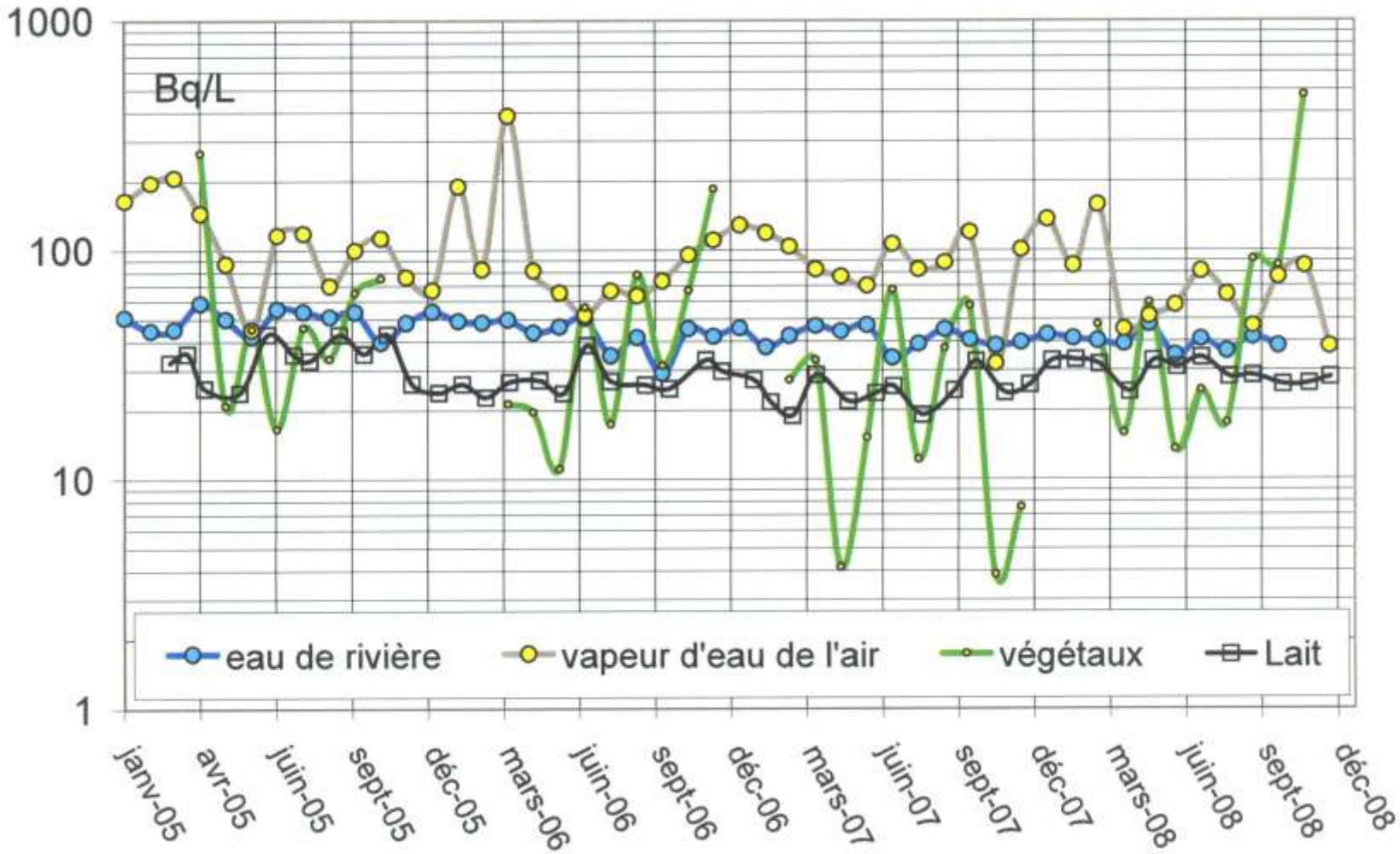
Activité de l'eau des cours d'eau : jusqu'à 20, 40, 180 Bq/l (Noirveau en 2007)

Activité des eaux souterraines : jusqu'à 10 à 50 Bq/l en 2007

Activité des denrées mesurées en 2008 : qq dizaines de Bq/kg frais

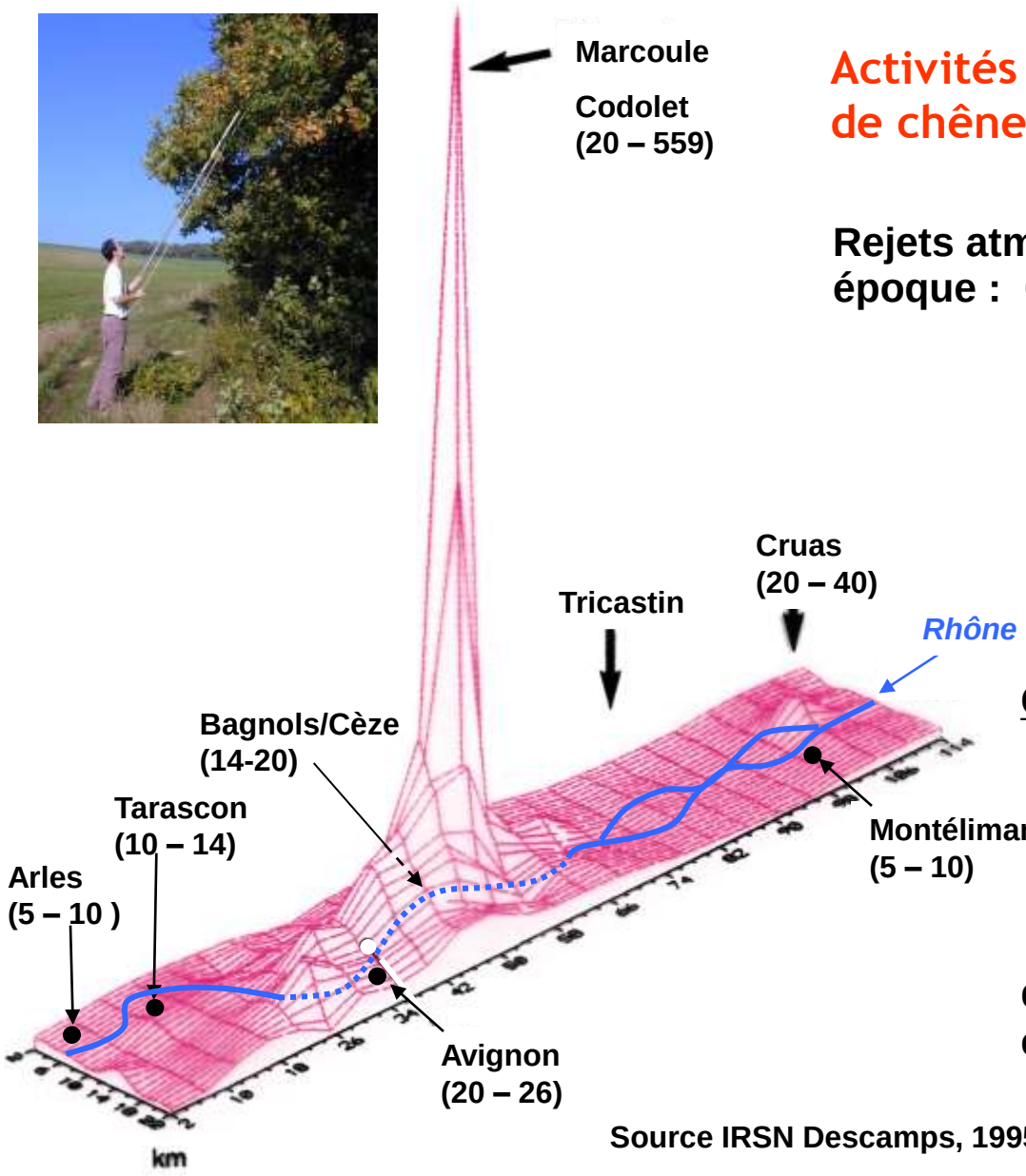
Source IRSN Vray, 2002

Valduc : un net marquage en tritium



Source CEA Guétat, 2009

Marcoule : Un net marquage en tritium



Activités de tritium lié aux feuilles de chêne (Bq/kg sec) en 1991-1992

Rejets atmosphérique de ^{3}H à cette époque : 600 TBq (8600 TBq en 1973)

<u>Ces dernières années :</u>

Rejets ^{3}H : 300 à 400 TBq

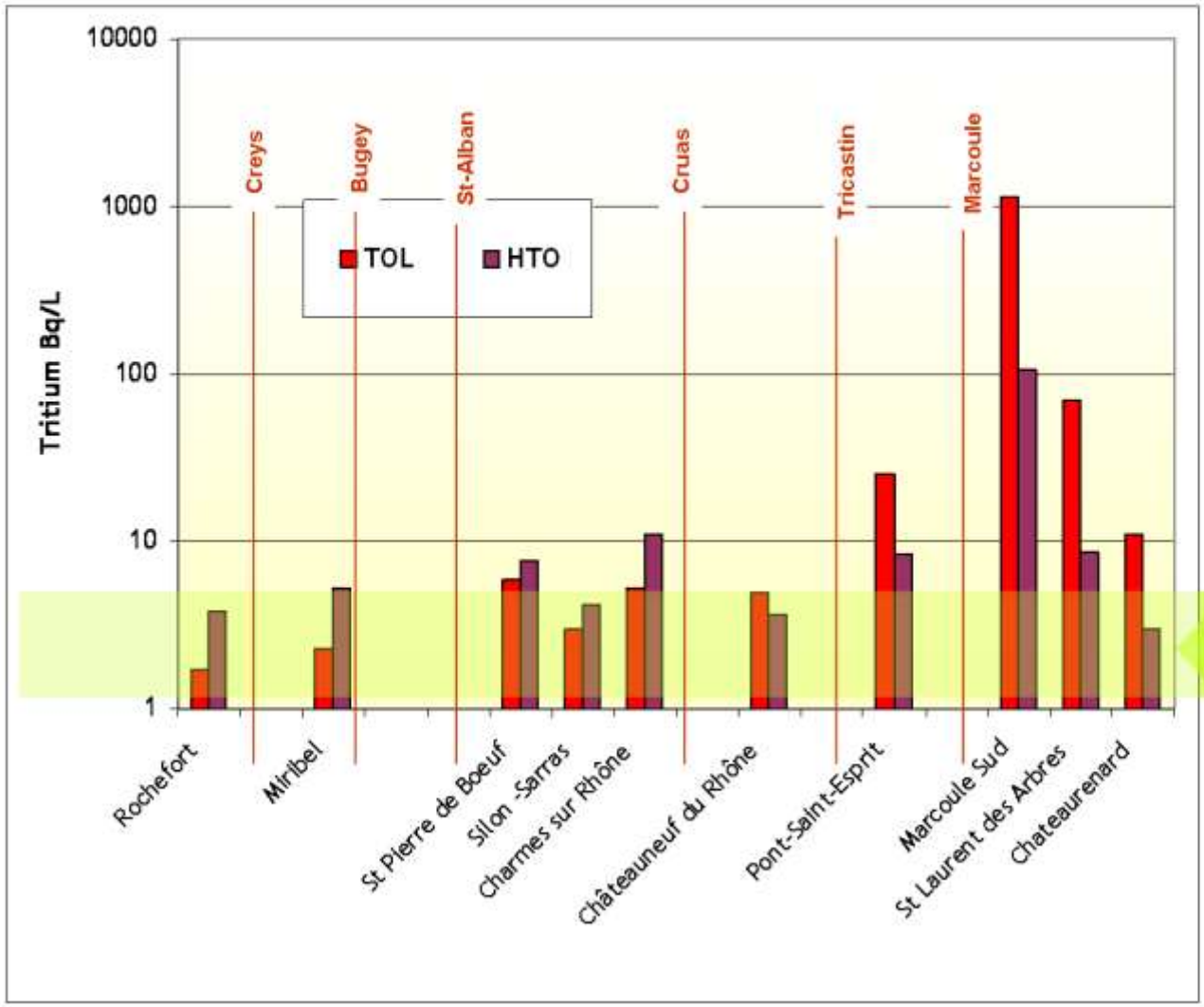
Activités dans l'environnement :

qq dizaines à qq centaines de Bq/L

dans toutes les composantes terrestres et aquatiques

Source IRSN Descamps, 1995

Tritium dans les feuilles de peupliers prélevées en juillet 2010 le long de la vallée du Rhône



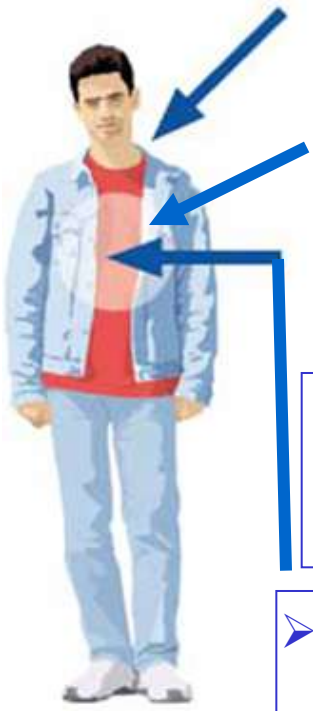
Influence de Marcoule ≈ 10 à 100 fois le bruit de fond naturel

Bruit de fond ≈ 1 à 3 Bq/L

Source IRSN Roussel-Debet, 2012

Dose due au tritium autour de Marcoule

(dose efficace à l'adulte)



pour
≈ 1 Bq/m³ d'air

Inhalation : 0,4 µSv/an

ration :
consommation de
produits locaux

- <u>denrées</u> : concentrations en TOL et HTO ≈ 100 Bq/L (majorant)
- <u>eau de boisson</u> ≈ 9 Bq/L
- <u>poisson</u> TOL ≈ HTO ≈ 3 Bq/L

Ingestion 0,5 µSv/an (négligeable)

75 % par
légumes (160 kg/an)
et fruits (56 kg/an)

eau, vin, poisson < 1%

Source IRSN Roussel-Debet, 2011

Conclusion

État des connaissances radioécologiques sur le tritium

- **Dans l'eau, l'air, le sol et les plantes : une bonne cohérence entre la connaissance des mécanismes et les observations ; quelques questions sur la cinétiques de transformation de l'hydrogène tritié (HT) et du méthane tritié (CH_3T)**
- **Dans les organismes animaux : assez peu de données au regard de la complexité (nombre de processus impliqués, interactions et variabilité en fonction de l'espèce, de l'âge et des aliments)**
- **Sur la base des connaissances disponibles et dans les conditions d'activités environnementales "normales" : pas de phénomène identifié comme susceptible d'engendrer à termes une "bio accumulation" significative et aucune mesure en attestant**
- **Des lacunes sur les molécules marquées de haute activité (uniquement industrie pharmaco-chimique ? Uniquement en milieu aquatique ?), sur leur devenir et donc sur les conséquences en terme « d'accumulation du tritium » (telle que constatée sur certains estuaires et côtes anglaises)**
- **Des difficultés de métrologie et de représentativité des mesures**

IRSN
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

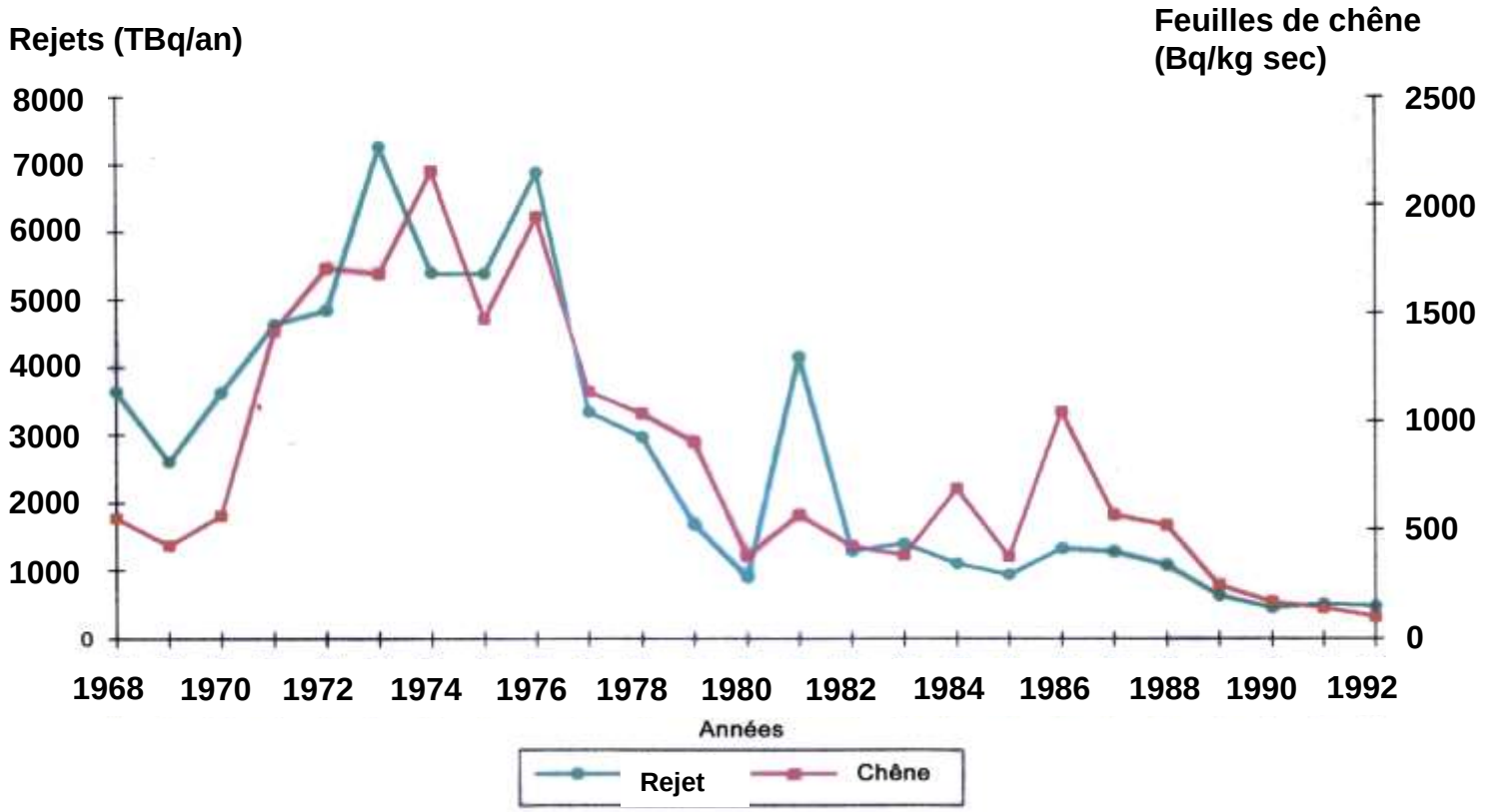
Merci de votre attention

Marcoule : Un net marquage en tritium du milieu terrestre

Relations entre les rejets tritiés atmosphériques de Marcoule et les concentrations en Tritium des cernes de croissance d'un chêne (1968-1992)

(dans les feuilles de chêne : 1 Bq/l d'eau de combustion = 0,6 Bq/kg de MS = 0,6 Bq/kg de MO)

Descamps et al, 1995bis



Le tritium dans les milieux physiques (air et eau) et dans les végétaux (terrestres ou aquatiques)

- **Échanges permaments (^{3}H / ^{1}H) vers l'équilibre avec des cinétiques rapides (minutes, heures), et variabilité avec de nombreux paramètres agro-climatiques (températures, humidités, saison, jour-nuit…)**
- **Suit le cycle de l'eau**
- **Incorporation à la matière organique lors de la photosynthèse**
- **Un rapport OBT/HTO (Bq/l d'eau de combustion par Bq/l d'eau de desiccation), de l'ordre de 1**
- **Si déséquilibre OBT/HTO $\Rightarrow$ Rémanence (litière des sols, cernes des arbres)**

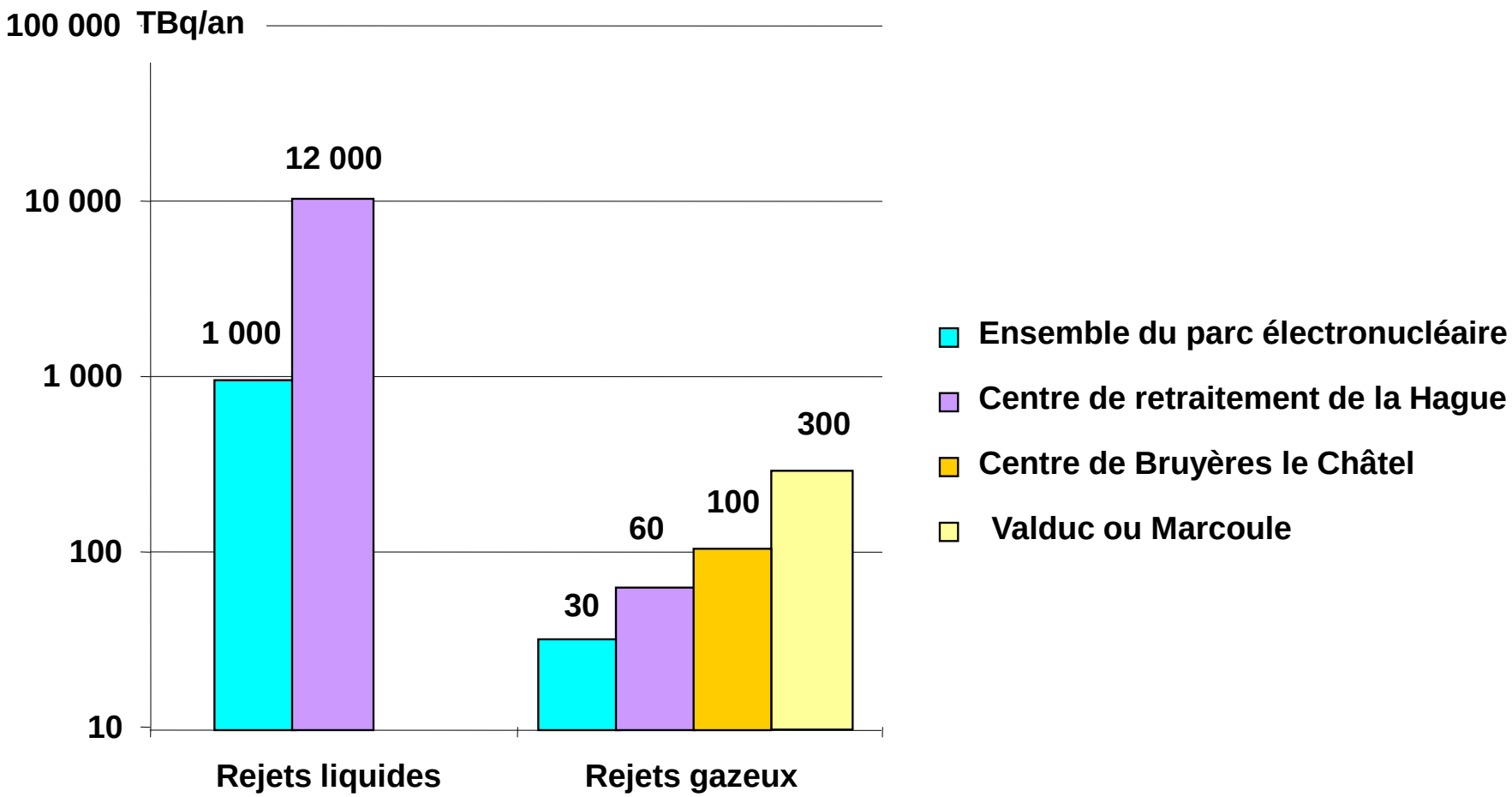
Connaissances satisfaisantes (mais pas pléthoriques),

Bonne cohérence entre la compréhension des mécanismes, les modèles déduits et les observations (mesures) faites dans l'environnement

<u>Point faibles</u> :

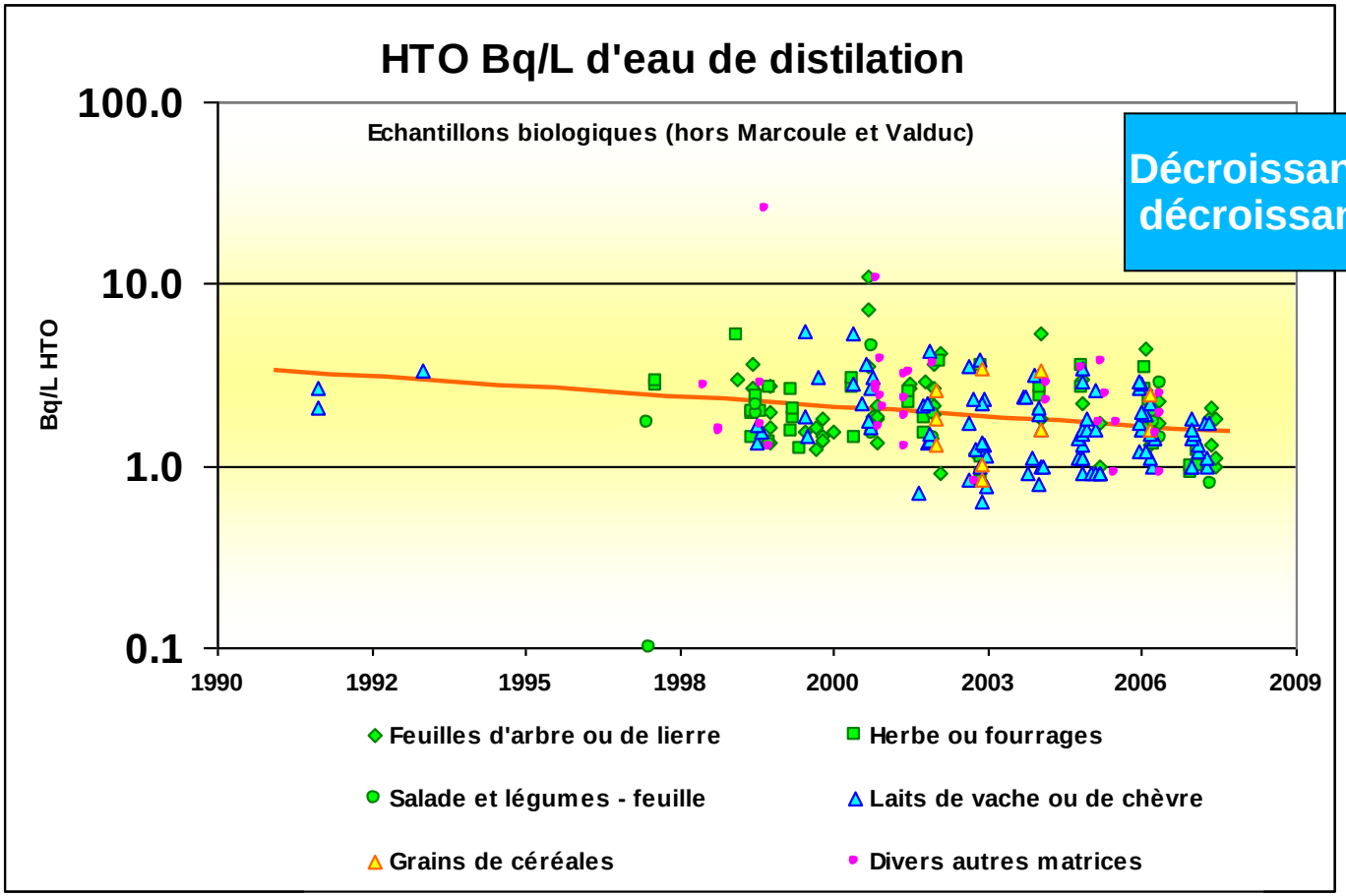
- **Comportement de l'hydrogène tritiée (HT) et du méthane tritié (CH_3T) : cinétique vers HTO mal connue**

Tritium rejeté par l'industrie nucléaire française



Téra-becquerel : 1 TBq = 1 $\times 10^{12}$ Bq (1 000 milliards)

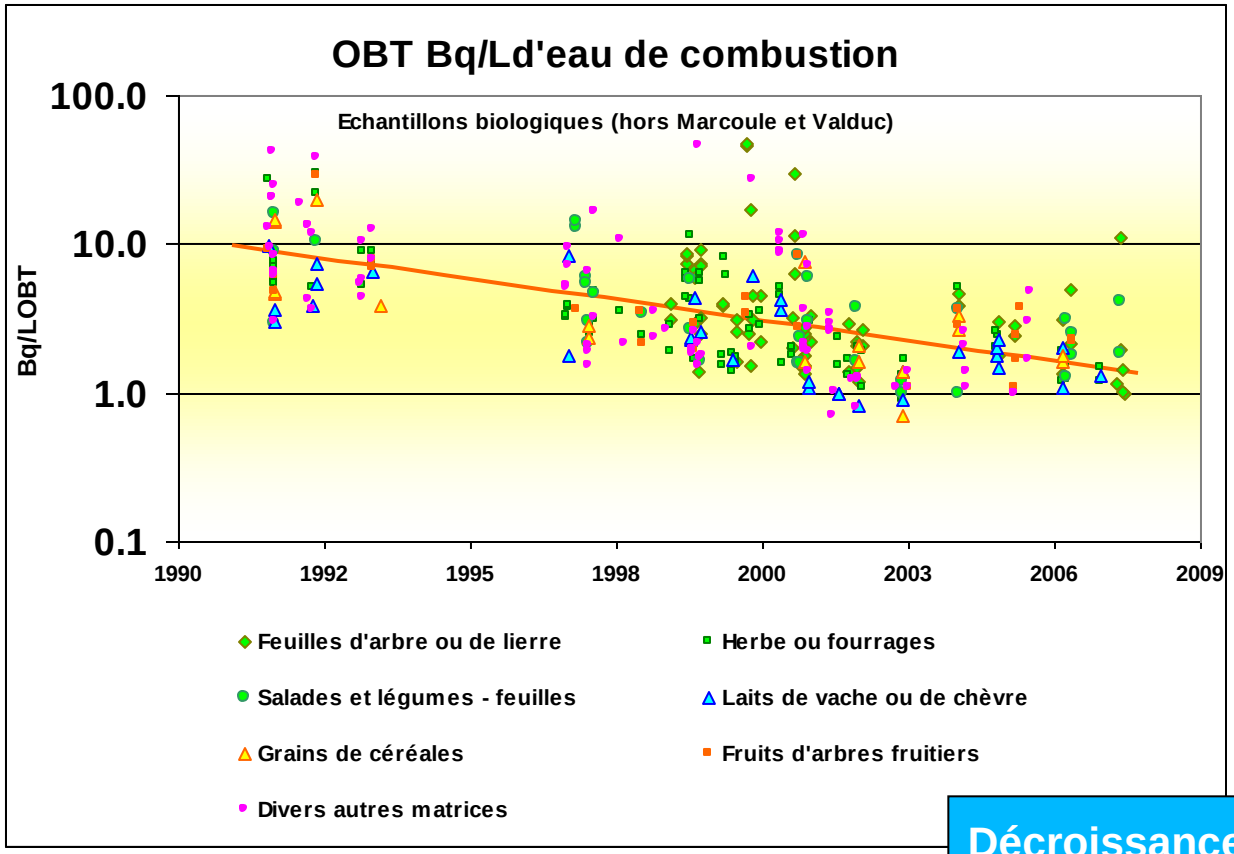
Valeurs mesurées dans l'environnement : HTO



Décroissance apparente ≈ décroissance radioactive

Environ 410 échantillons dont 64 % de valeurs supérieures à la limite de détection.

Valeurs mesurées dans l'environnement : OBT *



Décroissance apparente ≈ 6 ans, plus rapide que la décroissance radioactive

** Tritium organique échangeable et non échangeable*

Environ 375 échantillons dont 90 % de valeurs supérieures à la limite de détection

Rapports OBT/HTO dans diverses espèces marines

(données IRSN/LRC – EDF/CNPE Flamanville)

Date	Espèce	Lieu	OBT	±	HTO	±	OBT/HTO
16/03/2006	Fucus serratus	Carteret	5.0	2.1	3.9	0.8	1.3
15/03/2006	Fucus serratus	Dielette	12.5	0.9	9.5	1.0	1.3
14/03/2006	Fucus serratus	Goury	12.0	0.8	11.3	1.1	1.1
15/03/2006	Fucus serratus	Sciotot	6.6	1.6	8.1	1.1	0.8
15/03/2006	Fucus vesiculosus	Dielette	11.2	0.9	11.0	1.0	1.0
14/03/2006	Fucus vesiculosus	Goury	12.4	0.8	10.7	1.1	1.2
26/04/2006	Bulot	Flamanville	9.5	0.7	5.1	0.9	1.9
30/03/2006	Patelle	Carteret	4.2	2.0	4.0	0.8	1.1
28/03/2006	Patelle	Dielette	14.2	2.7	17.4	1.2	0.8
27/03/2006	Patelle	Goury	13.1	0.9	16.1	1.3	0.8
23/05/2006	Homard	Cartret	8.3	0.7	10.8	1.0	0.8
26/04/2006	Homard	Flamanville	9.1	0.8	10.1	1.1	0.9
19/06/2006	Plie	Carteret	8.6	0.9	5.8	0.9	1.5
26/04/2006	Sole	Flamanville	13.8	1.5	13.5	1.2	1.0
19/06/2006	Vieille	Carteret	9.7	1.9	6.9	0.9	1.4
26/04/2006	Vieille	Flamanville	13.3	2.0	14.0	1.2	1.0
		Moyenne	10.2		9.9		1.1
		Ecart type	3.1		4.1		0.3

L'activité moyenne HTO et OBT est de 10 Bq.L-1

Le rapport moyen OBT/HTO est de 1,1 ± 0,3

L'activité moyenne de l'eau de mer à la côte est de 10 Bq.L^{-1}

Le FC moyen est de 1

Le tritium est présent à plus de 85 % sous forme libre dans les organismes

L'activité du tritium exprimée par rapport au poids frais dépend de la teneur en eau du produit

Échantillon frais

Eau «de distillation » (= teneur en eau au sens habituel)

Très variable selon le produit : de 0,2 L/kg frais (céréale) à 0,95 L /kg frais (laitue)

Matière sèche

Eau de combustion

Par rapport au poids sec : en moyenne 0,6 L/kg sec, valeur peu variable par produit et entre produits différents

Par rapport au poids frais : très variable selon l'humidité du produit,
de 0,01 L /kg frais (lait, vin) à 0,5 L/ kg frais (miel, céréales)