

# Groupes de réflexion tritium

## Synthèse des travaux et recommandations

Dr Patrick Smeesters AFCN, président du groupe « impact du tritium »  
M. Roland Masse, AT, président du groupe « tritium :  
défense en profondeur »

### 1 | Introduction aux synthèses des travaux et recommandations des groupes de réflexion

#### 1|1 | Objectifs et approche

L'Autorité de sûreté nucléaire a souhaité en 2008 la création de deux groupes de réflexion chargés d'établir un état des lieux des connaissances scientifiques relatives à l'impact environnemental et sanitaire (groupe « impact du tritium») et un état des lieux des sources et de l'impact du tritium (groupe « tritium : défense en profondeur ») et d'élaborer, si nécessaire, des recommandations.

D'emblée il convient de souligner la volonté de pluralisme qui a sous-tendu la constitution de ces groupes. Ceux-ci reprennent en effet largement les parties prenantes françaises, tant du côté des autorités, des organismes d'expertises, de recherche et des opérateurs que de celui de la société civile. Chacun a eu la possibilité de s'exprimer, dans le cadre d'une présentation et au travers des débats, et de produire un texte écrit qui est repris in extenso dans le présent livre blanc. Ces textes écrits n'engagent que leurs auteurs. Les synthèses ci-après résument les principaux points abordés en présentant les différents points de vue, précisent le cas échéant s'ils font l'objet de désaccord et s'achèvent par une série de recommandations du groupe de réflexion.

En particulier, les groupes ont reçu pour mission d'explorer les thèmes :

- pour le groupe « impact », d'une possible accumulation du tritium le long de la chaîne alimentaire et d'une éventuelle réévaluation des effets sur la santé du rayonnement bêta du tritium.
- pour le groupe « défense en profondeur », des conséquences de l'augmentation future des rejets en tritium, et des solutions industrielles pour la séparation et la séquestration du tritium à partir des rejets liquides ou gazeux.

#### 1|2 | Le tritium

Le tritium ( $^3\text{H}$ ) est un isotope radioactif de l'hydrogène, son activité massique est de 358 TBq.g<sup>-1</sup>. A l'état naturel,  $^3\text{H}$  est en proportion infime : on compte de l'ordre de 1 atome de tritium pour 10<sup>18</sup> atomes d'hydrogène. Chaque année, environ 70 000 TBq (0,2 kg) de tritium sont produits par interaction des rayonnements cosmiques avec différents constituants atmosphériques. La période radioactive du tritium est de 12,3 ans, l'inventaire global du tritium naturel est évalué à 1300 PBq<sup>1</sup> (3,5 kg).

Le tritium existe sous différentes formes chimiques : eau tritiée (HTO), tritium gazeux (HT) et tritium lié à la matière organique (TOL).

Emetteur bêta de faible énergie (énergie moyenne de 5,7 keV), le tritium est généralement considéré comme un élément de faible radiotoxicité. Il suit le cycle de l'hydrogène, dans lequel il se dilue. La forme prépondérante dans la biosphère est l'eau tritiée, dont la période biologique par ingestion est estimée à 10 jours pour un adulte. La voie prépondérante d'exposition au tritium est l'ingestion. Une dose annuelle d'environ 0,01 µSv est due à l'exposition au  $^3\text{H}$  d'origine naturelle.

### 2 | Synthèse des travaux et recommandations du groupe de réflexion « Impact du tritium »

#### 2|1 | Bref rappel du contexte de ces travaux

Le tritium est d'origine naturelle ou anthropogénique. Il est produit sous forme d'hydrogène tritié, d'eau tritiée ou de molécules organiques tritiées. Sous l'effet du processus d'oxydation, le tritium gazeux se transforme en eau tritiée et rejoint ainsi le cycle de l'eau. L'hydrogène étant un constituant majeur de la matière vivante (avec le carbone, l'oxygène et l'azote), le tritium peut devenir un constituant de molécules organiques cellulaires à l'occasion de processus tels que la photosynthèse ou, chez l'animal, la biosynthèse des molécules constitutives des cellules, ou encore par des échanges d'hydrogène avec le milieu ambiant. Les différences de forces de liaison avec la matière organique conduisent à définir deux sous-fractions de tritium organiquement lié (TOL): le TOL échangeable (avec l'hydrogène de l'eau cellulaire) et le TOL non-échangeable (en pratique le tritium lié au carbone). Les processus d'échange peuvent être ralentis voire bloqués après la mort des organismes, permettant une certaine rémanence des molécules organiques dans les sols ou les sédiments. Emetteur bêta de faible énergie, le tritium est généralement considéré comme un élément de faible radiotoxicité. Le tritium ingéré sous forme organique via le bol alimentaire normal est environ trois fois plus radiotoxique que l'eau tritiée (le coefficient de dose par unité d'activité ingérée est environ trois fois plus élevé). Ceci est lié aux différences dans la période d'élimination biologique.

Depuis quelques années, le tritium est revenu à l'ordre du jour. D'une part, des concentrations élevées de formes organiques de tritium ont en effet été observées de façon inattendue chez certaines espèces marines (poissons plats, crustacés, mollusques) de la baie de Cardiff, zone dans laquelle il y a eu des rejets industriels de molécules biologiques marquées au tritium. Des observations analogues mais moins marquées ont par ailleurs été faites au large de Sellafield, zone où les rejets industriels sont théoriquement limités à de l'eau tritiée. Ces observations posent la question d'une possible accumulation du tritium le long de la chaîne alimentaire marine. D'autre part, sur le plan sanitaire, des synthèses

<sup>1</sup> Les principaux multiples utilisés : 10<sup>3</sup> kilo k ; 10<sup>6</sup> mega M ; 10<sup>9</sup> giga G ; 10<sup>12</sup> téra T ; 10<sup>15</sup> péta P ; 10<sup>18</sup> exa E

récentes (AGIR<sup>2</sup>, Article 31<sup>3</sup>) ont souligné plusieurs difficultés et/ou incertitudes concernant l'évaluation des effets de l'exposition au tritium : les conséquences de la distribution très hétérogène de la dose délivrée par le tritium, particulièrement lorsque celui-ci est incorporé dans l'ADN ou les histones, les incertitudes associées aux facteurs de qualité et EBR (efficacité biologique relative), la valeur du facteur de pondération  $w_r$  pour le tritium (une augmentation d'un facteur 2 a été proposée), le manque de données sur les effets d'expositions chroniques ou encore la dispersion des résultats quand il s'agit de molécules organiques tritiées, variant fortement suivant le type de molécule et l'effet biologique analysé.

C'est pour faire le point sur toutes ces questions que l'ASN a créé le présent groupe de réflexion.

## 2|2| La question de la bioaccumulation

### 2|2|1| Préalable sémantique

Comme souvent dans les réunions, quels que soient la composition et le degré d'expertise des groupes, beaucoup de discussions proviennent du fait que les mots n'ont pas le même sens pour les uns et pour les autres. Il a donc été nécessaire de se mettre d'accord sur la signification à accorder aux termes utilisés.

La *bioconcentration* signifie la présence dans l'organisme (aquatique par exemple) de substances à une concentration supérieure ou inférieure à celle mesurée dans le milieu (l'eau par exemple) au même moment, le *facteur de bioconcentration* étant simplement le rapport des concentrations du contaminant dans l'organisme vivant (ou un de ses organes ou tissus) et dans le milieu ambiant. Ces facteurs de bioconcentration peuvent donc être supérieurs, égaux ou inférieurs à 1. Les facteurs de bioconcentration sont souvent définis en laboratoire et, dans ce cas, ne considèrent pas la voie trophique. Certains, et ce sera le cas dans le présent rapport, utilisent les termes de bioconcentration et de facteur de bioconcentration dans un sens général et purement *descriptif* pour signifier l'augmentation des concentrations de tritium observées dans des organismes vivants par rapport à leur milieu ambiant, sans préjuger de la nature exacte de la source de contamination, ni du moment où cette contamination s'est produite, ni des mécanismes biologiques sous-jacents. L'interprétation des facteurs de concentration observés doit être faite avec la prudence nécessaire.

Le terme de *bioaccumulation* est souvent utilisé dans le même sens général que celui de bioconcentration. Dans le vocabulaire de l'environnement de la Commission générale de terminologie et de néologie<sup>4</sup>, la bioaccumulation est un « processus selon lequel une substance polluante présente dans un biotope pénètre et s'accumule dans tout ou partie d'un être vivant et peut devenir nocive ; par extension, le résultat de ce processus ». Au sens strict du terme, la bioaccumulation résulte d'un phénomène d'accumulation progressive d'un contaminant ou d'une substance toxique dans un organisme, à partir de *diverses sources*, y compris l'atmosphère, l'eau et les *aliments*, jusqu'à l'obtention d'un état d'équilibre entre accumulation et élimination de la substance<sup>5</sup>, avec une concentration dans l'organisme supérieure à celle des sources de contamination. Si le phénomène se reproduit à chaque étape d'une chaîne trophique (augmentation cumulative, à mesure qu'on progresse dans la chaîne alimentaire, des concentrations d'une substance), on parle alors de *bioamplification*. Le concept inverse aboutit à une dilution.

Enfin, si l'organisme vivant a été exposé dans son passé à des concentrations ambiantes plus importantes qu'actuellement, il peut exister une *rémanence* de cette contamination passée dans certains de ses tissus, induisant un déséquilibre apparent par rapport à la concentration actuelle du contaminant dans l'environnement, plus faible qu'autrefois. Ce phénomène se produit lorsqu'une substance se fixe dans l'organisme, à une concentration inférieure ou égale à celle de la source d'origine, et y reste plus ou moins durablement selon la vitesse d'élimination de la substance. La rémanence peut également être observée dans des milieux abiotiques (sols ou sédiments) lorsque des processus physicochimiques conduisent à fixer durablement une substance dans le milieu.

## 2|2|2| Observations et interprétations

Les présentations ont porté sur les observations réalisées d'une part en milieu marin (baie de Cardiff, Sellafield, La Hague) et d'autre part en milieu continental.

- Pour le cas de l'usine de production de molécules marquées de Cardiff, on observe une nette bioconcentration de tritium. L'hypothèse d'une bioaccumulation/bioamplification existe dès lors que le tritium provient de molécules organiques tritiées. Les teneurs en tritium des éléments de la faune marine sous les formes tritium libre (HTO) et tritium organiquement lié (TOL), rapportées à celle de l'eau de mer sous la forme HTO, varient par des facteurs compris entre 1000 et 10000 à Cardiff.
- Dans le cas de Sellafield (site de traitement de combustibles BNGSL British Nuclear Group Sellafield Limited, qui rejette de l'eau tritiée), les teneurs en tritium des éléments de la faune marine (poissons, crustacés et mollusques) tant sous la forme tritium libre (HTO) que sous la forme tritium organiquement lié (TOL), rapportées à celle de l'eau de mer sous la forme HTO, varient d'un facteur 10 à Sellafield, avec une hystérésis (effet retard) de 1 à 2 ans entre les valeurs maximales de rejet et les valeurs maximales de tritium dans les mollusques et les poissons plats. Ces constatations conduisent à des interprétations différentes au sein du Groupe de réflexion.

Pour les uns, les concentrations anormalement élevées mesurées dans les poissons près de Sellafield peuvent résulter soit d'une rémanence d'un marquage des sédiments suite à des rejets antérieurs importants soit de l'existence dans les mêmes eaux de rejets de molécules organiques tritiées.

Pour d'autres, une bioaccumulation liée à des rejets d'eau tritiée est clairement en cause. Selon eux, l'hypothèse de courants marins faisant remonter des molécules organiques marquées au tritium rejetées par l'usine radiochimique de Cardiff est réfutée en raison du fait que les analyses devant la centrale nucléaire de Wylfa, située sur la côte ouest du Royaume-Uni entre Cardiff et Sellafield n'indiquent pas de présence décelable de tritium dans la faune marine.

D'autres enfin considèrent ne pas avoir d'information suffisante pour pouvoir se prononcer.

- En ce qui concerne le site de La Hague (installations de traitement des combustibles AREVA NC: rejet d'eau tritiée), l'IRSN estime que les travaux réalisés sur le tritium dans l'environnement de La Hague (campagnes IRSN-AREVA) ne mettent pas de bioaccumulation/bioconcentration de tritium en évidence. Notons que les teneurs en tritium sous la forme HTO dans l'eau de mer, à proximité des émissaires de Sellafield en mer d'Irlande et de La Hague en mer de la Manche, sont sensiblement les mêmes.

<sup>2</sup> Health Protection Agency, Review of Risks from Tritium, Report of the independent Advisory Group on Ionizing Radiation, November 2007

<sup>3</sup> European Commission, EU Scientific Seminar 2007 "Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters, Radiation Protection No 152, Luxembourg, 2008

<sup>4</sup> Journal Officiel de la République française, Avis et Communications, 4 février 2010

<sup>5</sup> IRSN, Le tritium dans l'environnement, Rapport DEI 2009-05

L'ACRO rapporte qu'une bioconcentration (d'un facteur 2 à 7) a été mise en évidence dans une étude commune EDF – IRSN plus ancienne (années 1981-1985), sur un petit nombre d'échantillons disponibles de mollusques, de crustacés et de poissons. L'ACRO souligne, à partir des mesures effectuées sur les organismes marins de la baie de Cardiff, que les algues s'avèrent être de mauvais indicateurs pour suivre une contamination tritium de la faune en milieu marin, les concentrations en tritium étant nettement plus élevées (facteur supérieur à 10) dans les poissons que dans les algues. Elle indique que le choix de l'IRSN et d'AREVA en faveur de mesures dans les algues comme support de surveillance n'est pas le plus approprié pour identifier des phénomènes de concentration dans les organismes marins. L'ACRO souligne encore le nombre très limité de mesures effectuées entre 2000 et 2009 autour de La Hague sur des produits marins consommables (poissons plats, crustacés, mollusques, ...).

- Pour ce qui concerne le milieu terrestre, le CEA a présenté les mécanismes d'incorporation de l'eau tritiée dans les végétaux en s'appuyant sur les travaux effectués au sein de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique. Le CEA a rapporté également les résultats de mesures de surveillance du site de Valduc réalisées par le CEA et, en parallèle mais indépendamment, fournis par la SEIVA (association locale). L'activité de l'eau de combustion de la matière organique des végétaux se situe entre l'activité de la vapeur d'eau de l'air et l'activité de l'eau du sol. Pour le CEA, il n'apparaît pas de phénomène de concentration dans la matière organique. Selon le CEA, les calculs retenus par l'AIEA pourraient être pénalisants en surestimant la concentration de l'eau libre des végétaux.
- Enfin, dans les sédiments de cours d'eau impactés par des rejets de l'industrie horlogère, des concentrations en tritium organique élevées sont mesurées, avec des teneurs en tritium organiquement lié (TOL), rapportées à celle de l'eau de rivière sous la forme HTO, variant par des facteurs compris entre 1000 et 10000.

**En conclusion, le groupe considère que seules des campagnes de mesures environnementales appropriées, définies selon une approche scientifique, permettront de lever les doutes et d'apprécier les différents facteurs en jeu, notamment la répartition du tritium entre les différents compartiments (y compris la matière organique des sédiments) et, pour les espèces vivantes, de mieux définir les composantes libre et organiquement liée du tritium. Pour ce qui est du milieu marin, ces campagnes devront porter sur un nombre suffisant d'échantillons de produits marins consommables appartenant à différents niveaux trophiques (poissons plats, crustacés, mollusques, ...).**

Des publications anciennes sur des données environnementales (années 1970 – 1980) suggèrent que le tritium pourrait se bioamplifier dans certaines chaînes trophiques aquatiques et donc que la voie nutritionnelle est prépondérante sur la voie directe (eau). Depuis, les travaux de recherche sur ce sujet sont devenus très rares.

Les études réalisées à l'échelle internationale ont récemment fait l'objet de synthèse au niveau de l'AIEA (programme EMRAS 2006-2009) et de proposition de modèle de calcul (TRS N°472 et Tecdoc n°1616). Ces modèles prennent aujourd'hui explicitement en compte la matière organique tritiée élaborée à partir de l'eau tritiée (marquage d'un bol alimentaire), ce qui ne conduit pas à une augmentation des concentrations dans les niveaux trophiques supérieurs. Ceci ne préjuge cependant pas des transferts et incorporation suite à des rejets de molécules organiques tritiées particulières.

Le rapport de synthèse IRSN DEI 2009-05 précise que « sur la base des connaissances disponibles et dans les conditions d'activités environnementales "normales", il n'y a pas de phénomène identifié comme susceptible d'engendrer à terme une "bioaccumulation" significative et aucune mesure en attestant. » Ce rapport mentionne cependant que « dans les organismes animaux, il existe 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) ».

**Le groupe souligne le caractère encore fragmentaire des connaissances actuelles sur la rémanence et le comportement du tritium dans les sédiments et la nécessité de vérifier expérimentalement, par le biais d'études ciblées multidisciplinaires, sur la base de protocoles rigoureux, les hypothèses suggérées par les travaux anciens, et notamment l'influence possible de l'activité des microorganismes au niveau des sédiments aquatiques sur la remobilisation du tritium organique dans les organismes animaux aquatiques. D'une façon générale, les données scientifiques relatives à la transformation du tritium sous forme d'eau tritiée en tritium organique au long de la chaîne alimentaire devraient être renforcées ; des estimations quantitatives fiables sont nécessaires.**

## 2|3| Métrologie

Lorsqu'on parle de tritium il est impératif de préciser de quelle forme il s'agit (HTO, HT, TOL) et, même au sein des TOL, il faut clairement définir si on parle de la chaîne alimentaire ou d'une molécule marquée à des fins de recherche.

Une des raisons des divergences des résultats de mesures et de leur interprétation réside dans les difficultés de métrologie et de représentativité des mesures et finalement de l'absence de protocole normalisé. Une clarification méthodologique est nécessaire pour pouvoir comparer les mesures de tritium dans l'environnement.

La Commission d'ETablisement des Méthodes d'Analyse (CETAMA), groupe de travail français qui a pour mission d'améliorer la qualité des mesures, en organisant des collaborations entre laboratoires, a fait le point sur la mesure du tritium. En pratique, la surveillance environnementale de routine actuelle en France ne porte que sur la mesure du tritium libre (HTO). La CETAMA travaille actuellement à la validation (exercice d'inter comparaison 2009-2010) des méthodes de mesure du tritium organique lié total. La validation de la mesure du TOL non échangeable (TOL NE) est prévue au plus tôt pour dans 5 ans. Ce type de mesure en routine pose encore des problèmes métrologiques (test de séparation TOL-E et TOL-NE encore peu fiable, temps d'analyse de quelques jours,) et ne fait pas l'unanimité : la CETAMA est d'avis que des recherches sont nécessaires pour améliorer cette mesure afin de mieux connaître les différents facteurs de transfert dans l'environnement.

**Le groupe de réflexion s'est accordé sur la nécessité de poursuivre ce travail de validation et de normalisation des méthodes et protocoles de mesure et échantillonnage (« être sûr de ce qu'on mesure »), et de le conduire dans un cadre international.**

## 2|3|1| Nature des rejets

Une autre question reste ouverte : en dehors des industries de synthèse de molécules marquées, existe-t-il d'autres sources de rejets de tritium sous forme organique ?

Le rapport IRSN précité souligne l'existence générale de lacunes sur la présence de molécules marquées de haute activité spécifique, sur leur devenir et donc sur les conséquences en terme d'accumulation du tritium. Selon l'IRSN, réaliser des études de métrologie des différentes formes physico-chimiques (spéciation) sous lesquelles le tritium organique est susceptible d'atteindre l'homme est prioritaire.

AREVA estime pour ce qui le concerne qu'après plus de 10 ans d'exploitation de la charge du solvant de ses usines, aucun transfert du tritium des zones tritiées vers les zones non tritiées via le solvant n'a été constaté et, sur la base des facteurs de concentration observés dans les algues, mollusques, crustacés et poissons, en conclut que la forme chimique des rejets est essentiellement HTO.

**Vu la grande diversité des molécules organiques tritiées, le groupe s'accorde sur la nécessité d'être prudent dans les conclusions et les extrapolations et de procéder à une spéciation chimique des rejets des sites potentiellement concernés.**

## 2|4| La question des effets du tritium sur la santé

### 2|4|1| Pertinence du concept de dose moyenne à l'organe

Les effets du rayonnement bêta du tritium doivent-ils être réévalués ?

La question provient du fait que l'isotope tritium présente quelques spécificités : le parcours des électrons est très court (inférieur au diamètre de la cellule et même du noyau cellulaire) et la densité d'ionisation élevée, ce qui, si les molécules tritiées se trouvent dans le noyau cellulaire, est susceptible de provoquer des dommages en grappes au niveau de l'ADN. Deux autres phénomènes contribuent aussi à renforcer localement les effets du tritium : sa transmutation in situ en hélium et l'enrichissement en eau tritiée de l'eau d'hydratation de l'ADN (« buried tritium » ou « effet isotopique »). L'ensemble de ces effets physico-chimiques conduit à des lésions, qui peuvent conduire à leur tour à l'apparition de mutations dans l'ADN. Si la distribution de la dose est relativement homogène quand le tritium est sous forme d'eau tritiée, elle est par contre hétérogène lorsque celui-ci est incorporé dans l'ADN ou les histones. La question se pose dès lors de la pertinence du concept de dose moyenne à l'organe comme indicateur de risque. Autrement dit, les doses calculées selon la méthode classique (en utilisant les facteurs de conversion Sv/Bq de la CIPR) pourraient conduire à une estimation incorrecte du risque.

Il serait utile pour comparer les études sur les effets biologiques et sur la santé d'harmoniser les méthodes permettant d'évaluer la dose, ceci à différentes échelles (cellules et organes), en fonction de la forme de tritium, de la voie et durée d'exposition et du délai avant analyse.

Ces incertitudes et lacunes rendent nécessaires des recherches complémentaires sur l'efficacité biologique du tritium, en particulier pendant les divers stades de la grossesse.

Dans son récent rapport<sup>6</sup>, l'IRSN, tout en estimant que « l'approche dosimétrique du risque est considérée comme robuste et place le tritium parmi les radionucléides les plus faiblement radiotoxiques », indique que « des données sur le métabolisme et les effets biologiques associés au tritium organique en situations d'expositions environnementales font défaut » et qu'il convient de conduire des études radiobiologiques expérimentales sur différentes formes de TOL, avec un plateau technique adapté, dans un cadre de coopérations à l'échelle de l'Europe.

**Le groupe s'accorde sur la nécessité de compléter les connaissances sur les effets du tritium, en s'appuyant sur des méthodes récentes qui permettent de caractériser de manière rigoureuse les formes physico-chimiques utilisées (en couvrant une échelle de concentration incluant celle des rejets industriels) et les mécanismes biologiques en jeu, en ne se limitant pas à l'aspect de la cancérogenèse et en mettant l'accent sur l'âge au moment de l'exposition et sur les différences entre expositions accidentelles et chroniques.**

## 2|4|2| La question du $w_R$ et de l'EBR

Pour rappel, le facteur de pondération pour les rayonnements ( $w_R$ ) est utilisé en radioprotection pour tenir compte de l'effet du type de rayonnement dans le cadre de l'induction d'effets stochastiques à long terme tels que le *cancer* ou les effets héréditaires. Les avis du groupe sont partagés quant à la nécessité d'en augmenter la valeur (actuellement prise égale à 1) pour le tritium.

Contrairement aux conclusions du rapport britannique AGIR en 2007 et des experts de l'article 31 du traité EURATOM (cf séminaire scientifique de 2007), la CIPR a maintenu récemment son choix en faveur d'un facteur de pondération pour les rayonnements de 1 pour le tritium et les émetteurs bêta de faible énergie, compte tenu, d'une part des incertitudes et, d'autre part, des objectifs purement prospectifs du système de radioprotection et de la priorité à mettre sur l'optimisation et les contraintes de dose.

L'IRSN considère que l'EBR du tritium pour les effets stochastiques, à partir duquel le facteur de pondération  $w_R$  est proposé, est plus proche de 2 que de 1, mais estime que le choix d'un facteur de pondération  $w_R$  de 2 plutôt que 1 n'a qu'une importance mineure dans les situations de routine et n'est à prendre en compte que dans des situations d'évaluation de risque individuel. Cet avis n'est pas partagé par l'ACRO et l'ANCCLI qui plaident au contraire, par application du principe de précaution, pour un facteur de pondération de 5. Il n'y a pas de consensus sur ce point au sein du groupe.

## 2|4|3| Les études épidémiologiques

Une revue de la littérature montre que les études sur travailleurs exposés ne mettent pas en évidence d'excès de risque de cancer. Cependant, leur robustesse est limitée par la faible puissance statistique et/ou le manque d'information sur la dose tritium. Il convient de noter que les doses tritium enregistrées sont de l'ordre d'une dizaine de mSv ce qui implique des cohortes très importantes pour mettre en évidence une différence statistique significative entre exposés et témoins. Une approche internationale coordonnée s'appuyant sur des évaluations dosimétriques standardisées serait nécessaire. En France, la création d'une base de données tritium serait un préalable indispensable à la prise en compte du tritium dans le cadre d'études épidémiologiques.

Il existe par ailleurs très peu d'études se rapportant aux effets du tritium sur la population. Les études existantes sont de type géographique et peu informatives. De façon générale, seules les études multicentriques internationales ont potentiellement la puissance statistique suffisante pour apporter une réponse épidémiologique pertinente. Pour ce qui concerne les populations riveraines des installations nucléaires, le problème de la puissance statistique des études épidémiologiques est d'autant plus aigu que les doses sont faibles. La question de la détectabilité épidémiologique du risque tritium est donc posée et l'intérêt potentiel d'études moléculaires par biomarqueurs est souligné. En pratique, actuellement, les études épidémiologiques sur le tritium dans les populations s'avèrent non pertinentes. Ce qui ne signifie pas que les surveillances épidémiologiques ne soient pas nécessaires, comme pour tout site à risque industriel.

**Le groupe convient de l'importance d'analyser la faisabilité d'études épidémiologiques chez les travailleurs en France en considérant l'opportunité d'acquérir des données relatives à l'exposition au tritium et de l'intérêt de traiter ces données de manière harmonisée avec les autres études initiées au plan international.**

<sup>6</sup> IRSN, *Éléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium*, 2009

## 2|4|4| Les effets héréditaires

Dans l'espèce humaine, il n'a pas été observé jusqu'ici d'excès d'effets héréditaires, ni chez les descendants de personnes irradiées (survivants des explosions nucléaires d'Hiroshima-Nagasaki ; patients irradiés, travailleurs exposés aux rayonnements ionisants), ni dans les régions à forte radioactivité naturelle.

Les estimations quantitatives de risque sont donc basées sur des données indirectes : d'une part, sur la fréquence spontanée de mutations dans la lignée germinale dans l'espèce humaine, d'autre part sur des études expérimentales de suivi de la descendance de rongeurs irradiés.

Il existe très peu de données spécifiques au tritium et les évaluations de risque résultent de calculs réalisés à partir de données relatives aux effets héréditaires des radiations ionisantes en général.

Ainsi, partant du fait que les ovocytes ne présentent pas de division cellulaire depuis la période fœtale jusqu'à la fécondation, des auteurs britanniques ont calculé le risque qu'une femme transmette une anomalie radio induite 30 ans après consommation de poissons de la baie de Cardiff (TOL) par sa mère pendant la grossesse. La dose à l'ovocyte a été estimée à 2,7-5,4 mGy et le risque calculé est un excès de risque indétectable.

Les quelques études expérimentales menées aux USA sur l'induction de mutations (spermatogénèse) après exposition chronique à HTO donnent des résultats analogues à ceux obtenus après irradiation X ou gamma. Ces études expérimentales appellent cependant des réserves sur la validité de l'extrapolation inter-espèces.

**Les données relatives à l'induction possible d'effets héréditaires doivent être évaluées de façon critique et avec prudence. De nouvelles approches méritent d'être investiguées, en tenant compte des avancées actuelles de la biologie.** Ainsi, de nouveaux outils de la génétique et de l'imagerie cellulaire permettent l'analyse de la transmission des lésions et de leurs conséquences (étude des mutations récessives, étude des régions non codantes importantes pour le contrôle de l'intégrité du génome, de l'expression des gènes, ...). Par ailleurs, les outils de la génomique permettent par exemple d'identifier la transmission d'un caractère héréditaire (non apparent spontanément) dans des familles sur plusieurs générations.

## 2|4|5| Le cas des expositions in utero

L'ex-président de la SSK (Commission de radioprotection allemande) a présenté et discuté les résultats expérimentaux relatifs aux effets de l'exposition de l'embryon à la thymidine tritiée et à l'arginine tritiée (précurseur des histones) au stade préimplantatoire de la grossesse (expériences in vitro). Vu l'hétérogénéité de la distribution (incorporation spécifique dans l'ADN), la thymidine tritiée est de 1000 à 5000 fois plus efficace que l'eau tritiée pour l'induction d'effets délétères et ce pour une même activité appliquée. L'effet est encore plus marqué pour l'arginine tritiée (facteur 10 000) et est observé pour des activités plus faibles. Vu les mécanismes en jeu, cette observation pourrait être pertinente en matière de mutagenicité pour d'autres types de cellules et de systèmes. Il est à noter que ces études réalisées in vitro et avec des activités spécifiques élevées ne sont pas nécessairement représentatives de la situation in vivo.

Un exposé de synthèse concernant les effets du tritium in utero a été présenté par le CEA (Direction des Sciences du Vivant). Le tritium (HTO ou molécules organiques tritiées) traverse aisément la barrière placentaire. Comme pour les autres rayonnements ionisants, le rayonnement bêta du tritium engendre localement apoptose et mutagenèse pouvant avoir des conséquences tumorigènes ou fonctionnelles par altération de l'organogenèse (mécanismes de prolifération, migration et différenciation étroitement liés chez l'embryon). Le système nerveux central semble être une cible particulièrement vulnérable : la concentration en tritium y est 3 à 20 fois plus élevée que dans les autres organes et, pour quelques cGy (ce qui est de l'ordre du GBq.L<sup>-1</sup> de tritium), on observe une altération des fonctions cognitives et une réduction du nombre de cellules

neurales. Le transfert des molécules organiques tritiées vers le fœtus est un transport actif et celles-ci sont incorporées préférentiellement dans l'ADN des cellules en multiplication active. Le CEA conclut que les études actuellement disponibles sont difficiles à analyser en raison de leur caractère disparate et qu'une analyse plus approfondie des effets du tritium (HTO et molécules organiques tritiées) après exposition au cours du développement in utero serait nécessaire.

**Tous s'accordent sur le fait que des recherches complémentaires sont indispensables pour améliorer nos connaissances sur les effets de l'exposition de l'embryon et du fœtus au tritium.**

## 2|5| Recommandations du groupe de réflexion « impact du tritium »

Les diverses recommandations élaborées par le groupe sont regroupées ci-dessous. Clairement, le mot-clé qui les caractérise est celui de « recherches » (complémentaires).

Concernant l'environnement, le groupe recommande (par ordre de priorité) de :

1. Poursuivre le travail de validation et de normalisation des méthodes et protocoles de mesure et échantillonnage (« être sûr de ce qu'on mesure »), et le conduire dans un cadre international ;
2. Procéder à des campagnes de mesures environnementales appropriées, définies selon une approche scientifique, qui permettront de lever les doutes et d'apprécier les différents facteurs en jeu, notamment la répartition du tritium entre les différents compartiments (y compris la matière organique des sédiments) et, pour les espèces vivantes, de mieux définir les composantes libre et organiquement liée du tritium. Pour ce qui est du milieu marin, ces campagnes devront porter sur un nombre suffisant d'échantillons de produits marins consommables appartenant à différents niveaux trophiques (poissons plats, crustacés, mollusques, ...);
3. Vu la grande diversité des molécules organiques tritiées, d'être prudent dans les conclusions et les extrapolations et de procéder à une spéciation chimique des rejets des sites potentiellement concernés ;
4. Vu le caractère encore fragmentaire des connaissances actuelles sur la rémanence et le comportement du tritium dans les sédiments, vérifier expérimentalement, par le biais d'études ciblées multidisciplinaires, sur la base de protocoles rigoureux, les hypothèses suggérées par les travaux anciens, et notamment l'influence possible de l'activité des microorganismes au niveau des sédiments aquatiques sur la remobilisation du tritium organique dans les organismes animaux aquatiques. D'une façon générale, les données scientifiques relatives à la transformation du tritium sous forme d'eau tritiée en tritium organique au long de la chaîne alimentaire devraient être renforcées ; des estimations quantitatives fiables sont nécessaires.

Concernant les effets sanitaires, le groupe recommande (par ordre de priorité) de :

1. Compléter les connaissances sur les effets du tritium, en s'appuyant sur des méthodes récentes qui permettent de caractériser de manière rigoureuse les formes physico-chimiques utilisées (en couvrant une échelle de concentration incorporant celle des rejets industriels) et les mécanismes biologiques en jeu, en ne se limitant pas à l'aspect de la cancérogenèse et en mettant l'accent sur l'âge au moment de l'exposition et sur les différences entre expositions accidentelles et chroniques ;
2. Améliorer les connaissances sur les effets de l'exposition de l'embryon et du fœtus au tritium. Des recherches complémentaires à ce sujet sont indispensables ;
3. Evaluer de façon critique et avec prudence les données relatives à l'induction possible d'effets héréditaires. De nouvelles approches méritent d'être investiguées, en tenant compte des avancées actuelles de la biologie ;
4. Analyser la faisabilité d'études épidémiologiques chez les travailleurs en France en considérant l'opportunité d'acquérir des données relatives à l'exposition au tritium et traiter ces données de manière harmonisée avec les autres études initiées au plan international ;

5. Utiliser un facteur de pondération pour les rayonnements ( $w_R$ ) de 2 (au lieu de 1) dans les situations d'évaluation de risque individuel. Il n'y a pas de consensus au sein du groupe sur le facteur à utiliser dans les situations de routine.

### 3 | Synthèse et recommandations du groupe de réflexion « Tritium : défense en profondeur »

#### 3|1 | Les sources de rejets tritiés

L'équilibre naturel du tritium a été profondément modifié par les essais atomiques atmosphériques qui ont libéré dans l'environnement environ 240 EBq (650 kg) de tritium de 1945 à 1963. Cette émission a porté la concentration de l'eau de pluie à quelques centaines de Bq.L<sup>-1</sup> dans l'hémisphère Nord ; elle est actuellement de l'ordre de 1 Bq.L<sup>-1</sup>. Les océans constituent le récepteur de l'ensemble du tritium rejeté. En 1998 la concentration de l'eau de mer en surface au niveau de l'équateur était de 0,1 Bq.L<sup>-1</sup>. La concentration est en moyenne de l'ordre de 10 Bq.L<sup>-1</sup> dans la Manche, localement de quelques centaines de Bq.L<sup>-1</sup> en relation avec les rejets des installations nucléaires. Dans certains cours d'eau, la valeur peut atteindre localement quelques centaines de Bq.L<sup>-1</sup>.

L'ensemble des réacteurs nucléaires mondiaux rejettent annuellement 12 000 TBq (0,035 kg) de tritium essentiellement par voie liquide sous forme d'eau tritiée, et 6000 TBq (0,018 kg) par voie gazeuse. Le traitement du combustible, actuellement essentiellement l'usine de La Hague, ajoute 12 000 TBq (0,035 kg) de rejets par voie liquide et 70 TBq (0,0002 kg) par voie gazeuse.

En France, les rejets en tritium des installations militaires ont fortement décliné sur les 20 dernières années. La tendance générale est également une diminution mais elle résulte de la disparition progressive du stock constitué par les émissions des essais en atmosphère (dont il demeure environ 10,5 EBq (30 kg) en 2010).

L'évolution des techniques industrielles civiles et l'application des principes d'optimisation ont conduit à réduire fortement les rejets d'effluents à l'environnement pour la très grande majorité des éléments radioactifs au cours des dernières décennies. La situation est différente pour le tritium, les gaz rares et le carbone 14. Les sources industrielles de rejet de tritium ont doublé par exemple en vingt ans au centre de traitement de La Hague (la production d'électricité produite par ces combustibles traités ayant doublé pendant cette période).

L'extension du parc, l'évolution des combustibles d'une part et du contrôle de la réactivité dans les REP d'autre part, puis, dans un futur encore incertain, la mise en service des réacteurs à fusion, laissent prévoir que cette tendance est durable, même si la perspective d'énergie de fusion donne initialement au tritium une forte valeur ajoutée qui aura pour effet d'en diminuer les pertes.

#### 3|2 | La question de la réduction de l'impact du tritium

La convention OSPAR recommande de faire tendre les concentrations des radionucléides vers leurs niveaux naturels, en tenant compte de leur impact et des techniques de réduction (accords de Sintra). Il est donc légitime de chercher à diminuer l'impact du tritium, même si celui-ci est faible. Cet objectif doit être envisagé dans une perspective globale de radioprotection car les solutions envisagées pour réduire l'impact du tritium ne sauraient entraver la démarche générale de diminution des doses collectives ni aboutir à un surcroît inéquitable de doses pour les travailleurs.

Cette nécessité de faire référence à l'évaluation de l'impact radiologique global des pratiques fait apparaître le potentiel radiotoxique relativement faible, quoique disputé, mais différencié du tritium gazeux, de l'eau tritiée et des composés organiques (TOL : tritium organique lié) par rapport aux autres sources d'exposition de l'homme. Avec les facteurs de conversion de dose actuellement retenus par la législation, l'exposition au tritium est à l'origine de moins de 0,1 µSv par an pour les groupes de référence de La Hague (contribution inférieure à 1% de l'impact ajouté à la radioactivité naturelle) et de 0,4 µSv pour ceux des villages proches de Valduc. Ces facteurs de conversion pourraient être revus à la hausse (voir les conclusions du groupe de travail sur l'impact radiologique), mais quelles que soient les valeurs définitivement retenues le résultat attendu ne semble pas susceptible de modifier ni l'ordre de grandeur de l'impact ni l'optimisation des pratiques.

La source initiale de production du tritium en France provient des REP. La production dans le combustible reste séquestrée et ne contribue que marginalement à l'exposition de l'homme. L'essentiel des rejets tritiés provient de l'activation neutronique dans le circuit primaire. Il est envisageable de réduire cette production en augmentant la concentration isotopique de bore 10 et de lithium 7 mais le bénéfice serait faible. Il n'est pas envisageable de substituer le bore dans le circuit primaire des REP. Les grappes sources secondaires ajoutent aux rejets une contribution qui peut être faiblement réduite mais le bilan n'en est pas disponible. Environ 98% des rejets des REP se font par voie liquide. Compte tenu de l'impact radiologique relatif des émissions gazeuses, 100 fois plus élevé en moyenne pour les sites en bord de mer, par rapport aux rejets liquides, il pourrait être intéressant d'envisager d'augmenter encore le ratio d'émissions liquides, cependant cette solution suppose des exutoires appropriés qui ont déjà été pris en compte dans les études d'impact. Compte tenu des faibles impacts radiologiques et des volumes d'effluents à traiter la détritiation n'est pas réalisable.

EDF a un programme d'évolution des combustibles qui a pour objectif d'augmenter la production d'électricité par tonne d'uranium en diminuant la quantité des déchets, mais qui entraîne une augmentation de la production de tritium. L'ACRO relève qu'à Flamanville, le doublement des rejets tritiés n'est lié qu'à une augmentation de 4,5% de la production électrique.

L'usine de traitement du combustible de la Hague est la source principale de rejets tritiés effectués en très grande majorité par voie liquide, compte tenu de l'impact relatif mille fois plus faible que par voie atmosphérique. Compte tenu des volumes potentiellement à traiter, de l'ordre de 40 000 m<sup>3</sup> par an, et de la très faible activité volumique au moment du rejet, la détritiation n'est pas réalisable avec les techniques disponibles ; réduire le volume des effluents en tête de procédé aboutirait à une exposition professionnelle incompatible avec l'optimisation du procédé. Différents axes de réflexion, R&D, et amélioration des procédés ont été identifiés, notamment :

- la nécessité d'évaluer quelles évolutions du procédé ou options de traitement des combustibles ont un avenir industriel (voloxydation, pyrométallurgie... ) ;
- la réflexion nécessaire à la conception d'une usine de traitement qui ne disposant pas des mêmes avantages de site en matière de capacité radiologique n'obtiendrait pas des autorisations de rejets équivalents à ceux de La Hague.

Peu de discussions ont été consacrées à PHENIX et SUPERPHENIX pour la filière à neutrons rapides bien que la perspective du programme GEN IV doive en faire assez prochainement un sujet d'actualité. La production dans le combustible est plus élevée que dans les REP, 95% du tritium formé dans le combustible passe dans le sodium fondu du circuit primaire. Les barres de contrôle borées ajoutent une contribution importante, avec formation de méthane tritié. Les rejets de tritium, normalisés par GWe sont globalement 2 fois plus élevés que dans les REP. Il est envisageable de récupérer et de valoriser le tritium du sodium fondu du réacteur SUPERPHENIX. L'impact radiologique de cette opération reste à préciser.

Une faible fraction du tritium produit dans les réacteurs nucléaires est valorisée par de petits producteurs pour la synthèse de molécules marquées à usage industriel (luminescence) et pour la recherche. Bien que ces sources ne représentent qu'un faible volume de déchets, elles peuvent être à l'origine de marquages significatifs fortuits dans l'environnement. L'impact radiologique en est difficile à préciser, fortement dépendant de la spéciation. Il est nécessaire de prévoir un exutoire approprié pour la gestion de ces sources.

Des déchets tritiés sont stockés dans différents centres de l'ANDRA. Le Centre Manche (CSM) est à l'origine d'un marquage en tritium de la nappe pouvant atteindre plusieurs centaines de milliers de Bq/L par endroit, suscitant des appréciations diverses sur son évolution possible dans le temps. Il est nécessaire de poursuivre la caractérisation de la source et des transferts vers les exutoires et de conforter ces prévisions par des mesures appropriées. Les centres de Soullaines et de Morvilliers sont soumis à une gestion prudente de la capacité radiologique en tritium et à des règles contraignantes d'acceptation des colis. Cette situation permet de respecter un faible marquage environnemental. Toutefois l'ANDRA ne dispose pas de réelles autorisations pour les déchets tritiés, ce qui laisse orphelines de nombreuses sources de déchets tritiés. La solution explicitée dans le rapport CEA rédigé dans le cadre de la loi de 2006 est un entreposage d'une cinquantaine d'années en attendant l'ouverture d'un nouveau site de stockage qui disposera des autorisations appropriées.

Les activités de défense ont des installations de purification, recyclage et d'entreposage de matières nucléaires, pour la fabrication de sous-ensembles d'armes, pour le traitement ou la neutralisation de déchets. Il s'agit notamment des centres du CEA de Valduc, Marcoule et Bruyères le Châtel. La surveillance des installations montre une diminution des rejets de plus d'un facteur 100 depuis les années 1970-1980, avec un rejet de 95 TBq (0,3 g) par voie gazeuse en 2007 à Valduc. La réduction des rejets est obtenue par détritiation sous traitement thermique des déchets fortement tritiés de manière à séparer le support solide de l'eau tritiée, piégée ensuite sur zéolithe. Les volumes résultants sont faibles et l'entreposage se fait sur le centre de Valduc. La pratique est optimisée. Des recherches sont à poursuivre sur la valorisation des eaux tritiées. Un manque de données concernant certaines installations sous la responsabilité exclusive du ministère de la défense (réacteurs embarqués) a été constaté par le groupe de travail.

Les réacteurs à fusion se présentent comme une voie possible d'énergie dans un futur à préciser. L'installation de recherche ITER, qui fournira les éléments pour concevoir un prototype, doit entrer en service en 2019 pour une phase non-nucléaire et environ en 2025 en phase nucléaire et comportera un inventaire d'environ 1 kg de tritium dans les procédés soit 358 PBq. On ne dispose pas actuellement des autorisations de rejets tritiés. Le principe de fonctionnement d'ITER intègre la notion de défense en profondeur vis-à-vis du tritium qui est le combustible de la machine. Ces notions impliquent de multiples barrières de confinement statiques et des systèmes de confinement dynamiques dont la détritiation et le traitement de l'atmosphère à la source, la limitation des quantités d'eau en entrée et le recyclage et la détritiation de l'eau. Une installation est entièrement dédiée au tritium, à l'injection du mélange Deutérium-Tritium dans le tokamak, à l'extraction, la récupération et la purification du tritium pour sa réutilisation. La faisabilité du démantèlement a été intégrée dans la conception, elle suit le PNGMDR. Elle prend en compte la classification des déchets qui seront générés, de type TFA, FMA et MAVL, les exutoires disponibles et la disponibilité du site pour l'entreposage de ses propres déchets d'exploitation.

### 3|3| Recommandations du groupe de réflexion «défense en profondeur»

En conclusion il est apparu au groupe de travail que les recommandations et constats suivants pouvaient être proposés.

- La maîtrise des procédés actuels permet la comptabilisation des rejets effectués dans l'ensemble des installations ; pour le centre de stockage de la Manche, il est souhaitable d'améliorer la caractérisation de la source et des transferts vers les exutoires et de conforter ces prévisions par des mesures.
- La détritiation pour les REP des CNPE n'aurait qu'un effet limité sur l'impact radiologique et n'est pas réalisable actuellement à un coût acceptable. L'ACRO et l'ANCCLI, par application du principe de précaution, s'opposent à l'utilisation de nouveaux combustibles tant qu'il y aura des doutes sur l'impact du tritium.
- La détritiation pour l'usine de traitement du combustible irradié de La Hague n'est pas réalisable avec les meilleures techniques actuellement disponibles, et n'aurait qu'un effet limité sur l'impact radiologique. La stratégie rejets/déchets pour favoriser le stockage et récupération du tritium à un coût acceptable n'est envisageable que pour les matériaux d'activité élevée en tritium. L'ACRO et l'ANCCLI demandent que les combustibles les plus anciens soient traités en priorité pour limiter les rejets, alors qu'AREVA et EDF considèrent que la pratique est optimisée sur ce point.
- Pour l'ACRO et l'ANCCLI, il est nécessaire de réduire la production de tritium des installations civiles et militaires.
- Le confinement absolu du tritium est un problème à la fois technique et financier qui conditionne la mise au point des conteneurs.
- La gestion des déchets tritiés au niveau des stockages futurs nécessite des autorisations spécifiques en permettant la comptabilisation au niveau approprié. Des filières spécifiques doivent être accessibles aux petits producteurs.
- L'évaluation de l'impact du tritium des stockages de surface nécessite l'amélioration continue de la connaissance des termes sources, des différentes voies de transfert depuis les déchets et des processus de transfert associés, et, in fine de la quantification des poids relatifs des différentes voies de transfert en fonction des solutions techniques retenues.
- La mise en service d'entreposages de décroissance dédiés aux déchets tritiés des différentes filières doit être effectuée, conformément au décret en application du Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs (PNGMDR 2007-2009).
- Il est nécessaire de suivre le développement des travaux de détritiation menés pour ITER.