

# Le Tritium : un risque sous-estimé

Pierre Barbey et David Boilley - Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest (ACRO)  
<http://acro.eu.org>

Le Tritium [<sup>3</sup>H] ou [T] est l'isotope radioactif de l'hydrogène [H]. A ce titre, il peut se substituer aux atomes d'hydrogène qui constituent l'un des quatre éléments fondamentaux (avec le carbone, l'azote et l'oxygène) de la matière organique, donc des corps vivants.

Le Tritium rejeté dans l'environnement, sous forme d'eau tritiée [HTO] ou sous forme de gaz (tritiure et méthane), sera incorporé par les espèces vivantes de plusieurs façons :

- par inhalation,
- par transfert cutané,
- par ingestion.

En dehors des expositions professionnelles, c'est la voie ingestion qui est le mode d'exposition nettement dominant pour le public.

L'eau tritiée incorporée par un organisme vivant se comporte de manière identique à l'eau constitutive de cet organisme (un peu plus de 70% chez l'homme à plus de 90% dans certaines espèces végétales et animales) et se répartit dans tout le corps.

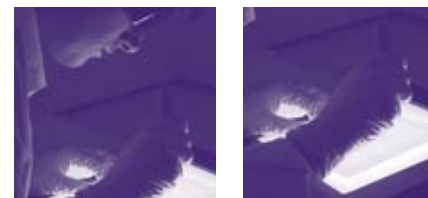
Parmi les espèces végétales, plantes en milieu terrestre et phytoplancton en milieu aquatique, l'activité de photosynthèse conduit à l'incorporation d'eau tritiée [HTO] pour la synthèse de molécules organiques [OBT<sup>1</sup>].

Ensuite, par ingestion, les espèces vivantes (et l'homme en bout de chaîne alimentaire) incorporent du Tritium sous forme d'eau tritiée mais également sous forme de tritium organique.

## 1 | Le système de radioprotection

En tant qu'isotope de l'hydrogène, le tritium est bien un élément toxique en raison exclusivement de sa nature radioactive. N'en déplaise à ceux qui, inlassablement, cherchent à le distinguer des autres substances radioactives pour mieux le banaliser. En fait, le débat qui s'est instauré depuis plusieurs années dans une partie de la communauté scientifique viserait plutôt à réévaluer à la hausse le risque radio-induit qui est affecté au Tritium [RP-152, 2008], [AGIR, 2007].

Dans le système de radioprotection actuel, le risque radio-induit est construit pour l'essentiel à partir des conséquences observées sur les survivants de Hiroshima et de Nagasaki qui ont subi une exposition externe à des rayonnements (principalement des photons) de façon aiguë. Quelques cohortes de patients et de travailleurs exposés ont permis de préciser le modèle de risque.



Lorsqu'il s'agit d'une contamination interne chronique, le système de radioprotection développé par la CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) vise à quantifier le dépôt d'énergie par le rayonnement émis par les substances radioactives incorporées en le moyennant par tissu ou par organe. Il intègre en outre un coefficient de correction, appelé facteur de pondération ( $w_R$ ), pour tenir compte de la nature du rayonnement, essentiellement de la densité d'ionisation qu'il produit dans la matière [CIPR103, 2007]. Par analogie (portant sur les doses équivalentes aux tissus ou aux organes), les coefficients de risques radio-induits issus d'Hiroshima-Nagasaki sont appliqués de la même façon aux situations de contaminations internes.

## 2 | Le risque lié au tritium est sous-estimé

Cette approche simplificatrice ne tient pas compte de l'hétérogénéité, en particulier à l'échelle cellulaire, du dépôt d'énergie produit par les rayonnements bêta du tritium du fait de son faible parcours dans la matière vivante. Ce parcours de l'ordre du micron (0,6 µm en moyenne et 6 µm au maximum), nettement inférieur au diamètre moyen d'une cellule, peut conduire à ce qu'une quantité d'énergie importante soit déposée dans l'ADN si l'atome de tritium est localisé au niveau de la chromatine. Cette question est en outre accentuée par une densité d'ionisation élevée due aux bêtas du tritium [tableau n°1] comparativement aux rayonnements de référence (gamma du cobalt-60 ou rayons X de 250 kV) censés représenter le rayonnement externe<sup>2</sup> produit lors des explosions nucléaires.

Tableau n°1 : Dépôt d'énergie par unité de parcours dans la matière

	Bêtas [ <sup>3</sup> H]	Ray. X (250 kV)	Gammas [ <sup>60</sup> Co]
Transfert linéique d'énergie (keV/µm)	4,7	1,7	0,22

Il s'agit là, sans doute, d'une des raisons principales qui expliquent la toxicité particulière du tritium car l'efficacité d'altération biologique des radiations est étroitement dépendante de la densité d'ionisation (exprimée par le transfert linéique d'énergie) [HUNTER, 2009].

En effet, de nombreux travaux scientifiques ont été réalisés pour évaluer les effets biologiques du tritium par comparaison à ceux obtenus à partir des rayonnements de référence. Ils sont très largement concordants pour exprimer, à dose absorbée égale, une radiotoxicité clairement plus élevée du tritium par rapport aux rayonnements de référence. A travers ces expérimentations, les auteurs calculent un coefficient d'efficacité

<sup>1</sup> Organically Bound Tritium ou tritium organiquement lié

<sup>2</sup> Les radiations gamma subies lors des explosions nucléaires se situent dans des énergies élevées (2 à 5 MeV).

biologique (EBR) qui est le rapport, pour une même dose absorbée, des dégâts biologiques induits par les bêtas du tritium sur ceux induits par les photons (X ou gamma). Ce rapport est souvent voisin de 1,5 à 2 (par comparaison aux rayons X) et de l'ordre de 2 à 4 (par comparaison aux rayons gamma) [LITTLE, 2008]. De tels résultats sont cohérents avec une approche biophysique qui conduit à un EBR théorique de 3,75.

Parmi ces expérimentations, celles qui présentent un intérêt prépondérant sont celles qui étudient des cibles biologiques telles que l'induction de cancers ou des anomalies chromosomiques car elles correspondent aux effets stochastiques. Dans ce cas-là, les EBR servent à construire les facteurs de pondération  $w_R$ .

Or, la CIPR a fixé arbitrairement un  $w_R = 1$  pour l'ensemble des rayonnements bêta quels qu'ils soient. Pourtant, l'on sait fort bien que l'efficacité biologique peut varier significativement selon l'énergie associée aux particules chargées légères. Straume a montré que l'EBR du Tritium est 10 fois plus élevé que l'EBR d'électrons de 15 MeV [STRAUME, 1995]. Concrètement, de ce seul point de vue du transfert linéique d'énergie, cela signifie que le risque radio-induit dû au tritium est sous-évalué d'au moins un facteur 2 à 4.

Par conséquent, toujours pour ce seul argument évoqué ici, les coefficients de dose par unité d'incorporation (CDUI) établis pour le Tritium [tableau n°2] devraient être corrigés, a minima, par ce même facteur. Ces coefficients permettent de calculer la dose efficace reçue par un individu (en Sv) à partir de la connaissance de l'activité incorporée (en Bq de tritium).

Tableau n°2 : Coefficient de dose efficace engagée par unité incorporée par ingestion (Sv.Bq<sup>-1</sup>) pour la population (\*)

Forme chimique	≤ 1 an	1-2 ans	2-7 ans	7-12 ans	12-17 ans	adulte
Eau tritiée	6,4.10 <sup>-11</sup>	4,8.10 <sup>-11</sup>	3,1.10 <sup>-11</sup>	2,3.10 <sup>-11</sup>	1,8.10 <sup>-11</sup>	1,8.10 <sup>-11</sup>
Tritium organique	1,2.10 <sup>-10</sup>	1,2.10 <sup>-10</sup>	7,3.10 <sup>-11</sup>	5,7.10 <sup>-11</sup>	4,2.10 <sup>-11</sup>	4,2.10 <sup>-11</sup>

(\*) : Directive 96/29/Euratom du 13 mai 1996

### 3 | Incorporation de produits organiques tritiés et modèle biocinétique CIPR

D'autres questions relatives à la toxicité du tritium laissent suggérer que la sous-estimation du risque lié à ce radioélément pourrait être plus importante encore.

Le modèle biocinétique pour l'eau tritiée et les composés organiques tritiés est décrit pour le travailleur dans la Publication 78 de la Commission [ICRP78, 1999]. Il est représenté par 2 compartiments représentant l'eau totale du corps (A) et l'ensemble de la matière organique (B). Il suppose que 97% de l'eau tritiée [tableau n°3] est en équilibre avec l'eau du corps et est retenu avec une demi-vie de 10 jours, le restant étant incorporé dans les molécules organiques et retenu avec une demi-vie de 40 jours. Pour les composés organiques du tritium [tableau n°4], 50% de l'activité est retenu avec la période biologique de l'eau libre (10 jours) et 50% avec la période biologique du carbone organique (40 jours).

Tableau n°3 : Données biocinétiques pour l'eau tritiée (HTO) selon la CIPR

Compartiment	Fraction incorporée (%)	Période biologique (jours)
A	97	10
B	3	40

<sup>3</sup> Base azotée dérivant de la pyrimidine, qui entre dans la composition des nucléotides, des acides nucléiques.

Tableau n°4 : Données biocinétiques pour le Tritium organiquement lié (OBT) selon la CIPR

Compartiment	Fraction incorporée (%)	Période biologique (jours)
A	50	10
B	50	40

Le modèle CIPR est mis en défaut par de récentes expérimentations où des rats ont été nourris avec du poisson prélevé dans la Baie de Cardiff (fort marquage en tritium libre et organique) [HODGSON, 2005]. Le modèle CIPR sous-estimerait donc l'incorporation dans la matière organique et sa rétention dans le corps comme l'indique le tableau suivant :

Tableau n°5 : Données biocinétiques pour le Tritium organiquement lié (OBT) [HODGSON]

Compartiment	Fraction incorporée (%)	Période biologique (jours)
A	70	10
B	30	100

D'autres auteurs, qui proposent un modèle alternatif multicompartimental, considèrent également que le modèle de la CIPR sous-estime la concentration en tritium organique présente dans le corps après incorporation [GALERIU, 2009].

L'ingestion de produits organiques tritiés est un facteur aggravant qui peut être parfois très élevé. Ainsi des auteurs ont pu montrer que la thymidine tritiée est environ 10 000 fois plus radiotoxique que l'eau tritiée. D'autres ont observé que l'arginine tritiée, qui est très rapidement incorporée dans l'embryon de souris, est encore plus radiotoxique pour cet élément (au stade de blastocyste) [MULLER, 1986].

### 4 | La transmutation du tritium et l'effet isotopique

Deux autres raisons théoriques viennent renforcer les raisons plausibles qui peuvent expliquer l'existence d'un EBR presque toujours supérieurs à 1 avec le tritium.

Tout d'abord, lorsqu'un atome [<sup>3</sup>H] se désintègre en émettant une particule bêta, il se transforme en [He] (hélium). Pour le tritium organique, cette transmutation conduit à la formation d'un carbone ionisé. Des expérimentations portant sur l'incorporation de bases pyrimidiques<sup>3</sup> tritiées dans différents types de cellules ont démontré un rôle mutagène de cette transmutation [TEEBOR, 1984]. Des auteurs utilisant de la thymidine tritiée sur des cellules humaines ont pu établir que 31% des ruptures monocaténaires produites sur l'ADN seraient associées à ce phénomène de transmutation [TISLJAR-LENTULIS, 1983].

Par ailleurs, la différence de masse atomique entre des isotopes d'une même famille conduit à ce qui est communément appelé un « effet isotopique ». La différence de masse entre le tritium et l'hydrogène (un facteur 3) est susceptible de produire un effet discriminant entre ces deux éléments. Des données scientifiques plus récentes suggèrent une concentration renforcée de tritium au niveau de la couche d'hydratation intimement liée à l'ADN. Bien qu'il ne s'agisse pas de tritium organiquement lié au sens usuel, Baumgartner et collaborateurs ont clairement montré un enrichissement d'eau tritiée liée à des macromolécules (par comparaison à l'eau libre dans la cellule). Cet enrichissement en tritium est d'un facteur 1,4 pour l'eau d'hydratation des protéines et d'un facteur 2 pour l'eau d'hydratation de l'ADN [BAUMGARTNER, 2004].

## 5 | Une première conclusion

En l'état actuel des connaissances et par précaution, l'ACRO estime que la CIPR devrait dès maintenant réévaluer le risque radio-induit lié au tritium en affectant un facteur de pondération  $w_T = 5$  pour le rayonnement bêta de cet isotope.

Certes, le système de radioprotection institué par la CIPR est avant tout un système de gestion du risque radiologique et, à ce titre, il doit limiter la complexification du système. Néanmoins, avec la récente CIPR-103, la Commission n'a pas hésité à modifier les facteurs de pondération pour les neutrons (en adoptant des fonctions continues complexes) et à réduire par un facteur 2,5 le  $w_T$  attribué aux protons. Enfin, alors que la CIPR prétend que son système de radioprotection s'appuie sur le principe de précaution, il n'est pas acceptable que la Commission continue à sous-estimer un risque, qui prend une grande proportion sur le plan environnemental, sous prétexte de simplification.

En attendant cette réévaluation, les autorités françaises doivent anticiper l'augmentation très probable du facteur de pondération.

## 6 | Comportement environnemental

Dans l'environnement, le tritium ne semble pas se comporter comme le prédisent les modèles<sup>4</sup>. De nombreux animaux marins ou de rivières ont des concentrations en tritium qui sont plus fortes que celle dans l'eau environnante. Il n'y a pas d'explication claire de ce phénomène pour le moment. Tout le tritium est-il rejeté sous forme d'eau tritiée ? N'y a-t-il pas des rejets sous autres formes chimiques qui échappent aux contrôles ? Ou, plus directement, peut-il exister un mécanisme de bioaccumulation (terme employé par les autorités anglaises en charge du contrôle de l'environnement) non encore élucidé ?

A notre connaissance, aucune donnée environnementale ne met en évidence le phénomène inverse. Ces observations tendent donc à accentuer l'impact du tritium dans l'environnement et doivent aussi être prises en compte.

## 7 | Conséquences pour les rejets tritiés

Conformément à l'article 6 de la directive 96/29/Euratom, « la justification des catégories ou types de pratiques existants peut faire l'objet d'une révision chaque fois que des connaissances nouvelles et importantes concernant leur efficacité ou leurs conséquences sont acquises ». La réévaluation en cours au niveau européen de la radiotoxicité du tritium impose donc de revisiter les pratiques concernant les rejets et le stockage des déchets tritiés. En application du principe de précaution, les autorisations de rejet devraient être revues à la baisse. Rappelons que les engagements de la France vis-à-vis de la convention d'OSPAR vont dans le même sens pour les rejets dans l'Atlantique Nord. Ce n'est malheureusement pas la tendance actuelle.

Nous sommes conscients que le tritium peut difficilement être capté et que son stockage pose des problèmes, comme le montre le cas du centre de stockage de la Manche qui contamine encore les nappes phréatiques. Il faut donc viser à réduire sa production en amont. Les demandes récentes d'EDF d'augmenter ses rejets tritiés suite à l'utilisation de nouveaux combustibles à haut taux d'enrichissement, n'ont pas été justifiées.

Aucun bilan environnemental de cette nouvelle pratique n'ayant été présenté, l'ACRO fait sienne la conclusion de l'ANCCLI qui, à l'issue d'un colloque pluraliste sur le sujet, a demandé qu'« aucune augmentation des rejets de tritium [ne soit permise] tant que les effets liés à une exposition chronique à cet élément ne seront pas mieux connus ». Elle regrette aussi que des autorisations de rejet à la hausse aient été délivrées alors que les travaux de ces groupes n'étaient pas terminés. Cela viole l'esprit de la convention d'Aarhus qui doit encadrer toute concertation en matière d'environnement.

Il en est de même pour la production de tritium militaire qui n'a jamais été justifiée ni débattue démocratiquement. L'ACRO aimerait connaître les stratégies mises en place pour diminuer cette production dans un contexte international qui tend vers une réduction des arsenaux nucléaires des grandes puissances.

## 8 | Conclusion

Il y a 10 ans déjà, lors d'un colloque de la SFRP<sup>5</sup> centré sur le tritium, l'ACRO était intervenue pour demander que soit réévalué le risque associé au tritium notamment en prenant mieux en compte les EBR définis expérimentalement. Nous n'avons pas cessé de porter sur la place publique les nouvelles données de la littérature scientifique et d'interpeller les pouvoirs publics face aux tentatives de banalisation des rejets de tritium dans l'environnement.

L'ACRO continuera inlassablement à réclamer que le risque radio-induit lié au tritium soit revu à la hausse et que toutes les conséquences soient tirées en matière de plans de surveillance environnementale (analyses OBT) et d'évaluation de l'impact sanitaire.

Enfin l'ACRO estime que la question du Tritium mérite que des axes de recherche soient fortement soutenus en particulier dans le domaine de l'épidémiologie (conduire des études d'envergure internationale comme cela a été fait pour le radon), dans celui d'une meilleure connaissance des effets à l'échelle cellulaire et sur la question d'une possible bioaccumulation dans l'environnement.

<sup>4</sup> Voir la contribution d'A. Guillemette et J. C. Zerbib à ce livre blanc.

<sup>5</sup> Colloque sur le tritium organisé par la Société Française de Radioprotection. Octobre 1999.

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [AGIR, 2007] Report of AGIR (2007). Review of risks from Tritium.
- [BAUMGARTNER, 2004] Baumgärtner F. and Donhaerl W. Non-exchangeable organically bound tritium (OBT): its real nature. *Anal. Bioanal. Chem.* 379 (2004) 204-209.
- [GALERIU, 2009] Galeriu D., Melintescu A., Beresford N.A., Takeda H. and Crout N.M.J. The dynamic transfer of  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in mammals: a proposed generic model. *Radiat. Environ. Biophys.* 48 (2009) 29-45.
- [HODGSON, 2005] Hodgson A., Scott J.E., Fell T.P. and Harrison J.D. Radiation doses from the consumption of Cardiff Bay flounder containing organically bound tritium (OBT). *J. Radiol. Prot.* 25 (2005) 149-159.
- [HUNTER, 2009] Hunter N. and Muirhead C.R. Review of relative biological effectiveness dependence on linear energy transfer for low-LET radiations. *J. Radiol. Prot.* 29 (2009) 5-21.
- [ICRP78, 1999] ICRP Publication 78 (1999) Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers. *Ann. ICRP* 27(3-4).
- [ICRP103, 2007] ICRP Publication 103 (2007). The 2007 recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *Ann. ICRP* 37(2-4).
- [LITTLE, 2008] Little M.P. and Lambert B.E. Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium. *Radiat. Environ. Biophys.* 47 (2008) 71-93.
- [MULLER, 1986] Müller W.U., Steffer C., Molls M. and Glück L. Radiotoxicity of  $^3\text{H}$ -Thymidine and  $^3\text{H}$ -Arginine in pre-implantation mouse embryos in vitro. *Radiat. Prot. Dosimetry* 16, 1-2 (1986) 155-158.
- [RP-152, 2008] Radiation protection n°152 (2008). Emerging issues on Tritium and low energy beta emitters.
- [STRAUME, 1995] Straume T. High-energy gamma rays in Hiroshima and Nagasaki : implications for risk and  $w_R$ . *Health Phys.* 69 (1995) 954-956.
- [TEEBOR, 1984] Teebor G.W., Frenkel K. and Goldstein M.S. Ionizing radiation and tritium transmutation both cause formation of 5-hydroxymethyl-2'-deoxyuridine in cellular DNA. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 81 (1984) 318-321.
- [TISLJAR-LENTULIS, 1983] Tisljar-Lentulis G., Henneberg P., Feinendegen L.E. and Commerford S.L. The oxygen enhancement for single- and double-strand-breaks induced by tritium incorporated in DNA of cultured human T1 cells. Impact of the transmutation effect. *Radiat. Res.* 94 (1983) 41-50.