

# Rejets de tritium des CNPE<sup>1</sup> d'EDF

Bernard Le Guen, Vincent Chrétien, Pierre-Yves Hémidy  
EDF

## 1 | Introduction

La communauté internationale est aujourd'hui confrontée à une hausse de la consommation d'électricité dans le monde, estimée à 60% d'ici 2030 d'après l'Agence Internationale de l'Energie, et à la nécessité de lutter contre l'effet de serre dans un environnement énergétique marqué par un prix du pétrole durablement élevé du fait de l'épuisement attendu des gisements d'hydrocarbures. La lutte contre le réchauffement climatique va par ailleurs de plus en plus contraindre les pays à privilégier les énergies qui n'émettent pas de CO<sub>2</sub>, notamment dans la production d'électricité. Dans ce cadre, un nombre croissant de pays estiment que l'énergie nucléaire peut constituer une réponse aux besoins énergétiques futurs, et 25 réacteurs nucléaires sont actuellement en construction dans le monde et 220 projets sont à l'étude.

Les rejets de tritium issus de la fourniture d'électricité d'origine nucléaire s'ajoutent à une production d'origine naturelle et aux quantités importantes encore présentes attribuables aux essais militaires aériens réalisés dans les années soixante. Compte tenu de la faible radiotoxicité du tritium, associée au fait qu'il n'existe pas aujourd'hui de méthode industrielle de piégeage du tritium dans les conditions de production des Centres Nucléaires de Production d'Électricité (CNPE), le tritium produit est intégralement rejeté dans le milieu récepteur. Ces rejets, maîtrisés, surveillés et comptabilisés, se font dans le strict respect des autorisations, et n'induisent pas d'impacts significatifs sur l'homme et le milieu naturel.

Cette publication a pour objet de présenter comment se forme le tritium produit par les CNPE, les quantités rejetées et les actions engagées par EDF pour optimiser ces rejets et en surveiller les impacts.

## 2 | Origine et formation du tritium dans les CNPE

Dans les réacteurs nucléaires à eau sous pression comme ceux du parc nucléaire d'EDF en France (58 réacteurs ou « tranches » en exploitation), le tritium se forme principalement par fission dans le combustible (Figure 1). Mais ce tritium reste confiné en quasi-totalité dans la gaine du combustible sous forme d'hydrures métalliques, en raison de sa forte affinité pour le zirconium constituant la gaine du combustible, et représente au final moins de 0,01% du tritium rejeté par les CNPE.

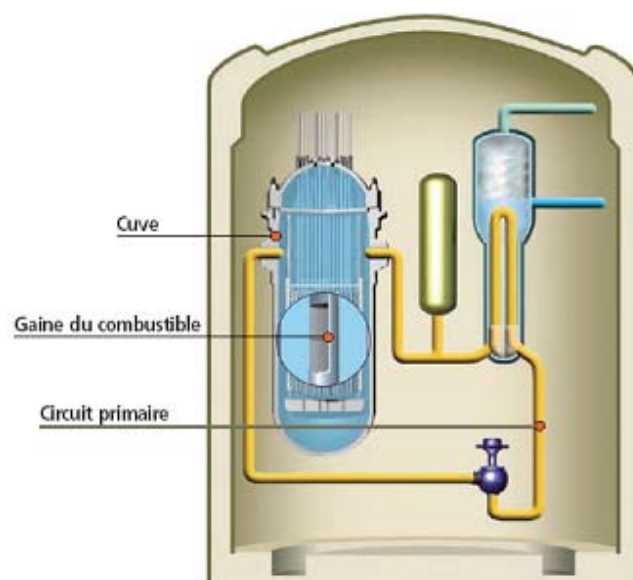


Les composants de l'eau du circuit primaire constituent l'autre source de production du tritium. Le tritium s'y forme par activation du bore 10 utilisé comme modérateur de la réaction nucléaire (86 % de la production de tritium dans le circuit primaire), et par activation du lithium 6 (14% de la production de tritium dans le circuit primaire), du lithium 7 ainsi que du deutérium.

Enfin dans les CNPE des paliers 1300 MW et 1450 MW, des grappes sources secondaires, utilisées pour la surveillance de la réactivité du cœur en phase de rechargement de combustible et en phase sous critique du réacteur, sont à l'origine de 20 à 40 % de production supplémentaire de tritium dans le circuit primaire.

C'est donc principalement le tritium produit par activation dans le circuit primaire qui se retrouve dans les effluents et donc dans les rejets autorisés d'effluents radioactifs liquides et gazeux des CNPE.

Figure 1 : Schéma du circuit primaire et zoom sur la gaine du combustible. Source EDF.



<sup>1</sup> Centre Nucléaire de Production d'Électricité.

### 3 | Rejets de tritium des CNPE

Les rejets de tritium des CNPE sont effectués conformément aux autorisations de rejets, spécifiques à chaque site. Ils représentent moins de 3 g.an<sup>-1</sup> (1,0.10<sup>15</sup> Bq.an<sup>-1</sup>) dans les rejets d'effluents liquides et un peu moins de 0,1 g.an<sup>-1</sup> (3,4.10<sup>13</sup> Bq.an<sup>-1</sup>) dans les rejets d'effluents gazeux pour l'ensemble des 58 tranches du parc d'EDF en exploitation en France.

Les rejets moyens de tritium par tranche sont variables suivant le palier de puissance du réacteur (900, 1300 et 1450 MW).

En effet, la production de tritium est liée :

- à la quantité d'énergie produite,
- à des paramètres de conception (présence de grappes sources secondaires par exemple, sur les paliers 1300 et 1450 MW),
- au taux d'enrichissement du combustible utilisé,
- à la durée des cycles de fonctionnement entre deux arrêts pour rechargement du combustible (de 12 à 18 mois suivant les tranches).

Tableau 1 : Rejets moyens de tritium liquide par tranche en 2008.

Palier	Nombre de tranches	Rejets moyens de tritium liquide en TBq/an par tranche	Limites réglementaires de rejets de tritium liquide en TBq/an par tranche
900 MW	34	11	20 à 40
1300 MW	20	27	30 à 50*
1450 MW	4	27	40 à 45*

\* La limite haute correspond à l'utilisation de combustible à Haut Taux de Combustion (HTC). Ce type de combustible ne sera finalement déployé que dans un seul réacteur, sur le CNPE de Nogent en 2010.

Tableau 2 : Rejets moyens de tritium gazeux par tranche en 2008.

Palier	Nombre de tranches	Rejets moyens de tritium gazeux en TBq/an par tranche	Limites réglementaires de rejets de tritium gazeux en TBq/an par tranche
900 MW	34	0,2	2
1300 MW	20	0,8 <sup>2</sup>	2,5 à 4
1450 MW	4	0,3	2,5

### 4 | Actions entreprises pour limiter les rejets de tritium et leurs impacts

En raison des volumes d'effluents importants contenant des activités volumiques très faibles, il n'existe pas aujourd'hui de technique industrielle adaptée au piégeage du tritium dans les effluents radioactifs liquides des CNPE.

Cependant, EDF poursuit ses recherches pour limiter les rejets de tritium.

Ainsi, la production du tritium dans le circuit primaire des centrales à eau sous pression étant, comme nous l'avons vu, en majeure partie due à l'activation du bore 10, EDF a étudié les possibilités de substitution de cet élément chimique.

En effet, le bore est présent dans le circuit primaire sous forme d'acide borique B(OH)<sub>3</sub>, dont la concentration est ajustable pour permettre de suivre les variations de réactivité pendant le cycle de fonctionnement du réacteur entre deux rechargements de combustible. Ainsi, sa concentration varie de 1500 à 1700 ppm au moment de la divergence du réacteur au redémarrage de la tranche, pour se stabiliser autour de 1000 à 1100 ppm à pleine puissance en début de cycle. Cette concentration diminue ensuite à raison de 3 à 4 ppm par jour pour tendre vers 0 ppm en fin de cycle.

<sup>2</sup> NB : Sur ce palier, une modification va permettre de réduire les rejets gazeux.

<sup>3</sup> L'estimation de l'impact dosimétrique dépend du site, du fait notamment de la prise en compte des habitudes alimentaires de la population du groupe de référence et de la dispersion/dilution atmosphérique des rejets dans le milieu récepteur (notamment pour les sites dits à orographie complexe comme Paluel, Penly ou encore Flamanville), et des conditions météorologiques.

Le bore a été choisi comme modérateur neutronique car il dispose d'une bonne section efficace microscopique (760 barn). Cependant l'utilisation d'autres produits chimiques en substitution au bore a été évaluée par EDF.



Ces produits doivent vérifier a minima les 5 critères suivants :

- **Critère 1** : l'acide borique jouant un rôle primordial dans la maîtrise de la réaction neutronique et donc de la réactivité d'un réacteur nucléaire de puissance, la sélection d'un produit de substitution doit reposer principalement sur son caractère neutrophage.
- **Critère 2** : les substances retenues doivent être solubles, et être physiquement et chimiquement stables dans toutes les conditions de fonctionnement du circuit primaire.
- **Critère 3** : les substances retenues ne doivent pas engendrer, par activation neutronique dans le circuit primaire, de produits radiotoxiques susceptibles de mettre en cause l'estimation des conséquences radiologiques, la radioprotection ou le dimensionnement des bâtiments nucléaires et des systèmes de traitement des effluents.
- **Critère 4** : l'emploi des substances retenues ne doit pas présenter un danger pour l'intégrité de l'installation. On doit tout particulièrement étudier les effets de corrosion provoqués par les substances retenues sur les matériaux du circuit primaire.
- **Critère 5** : l'emploi des substances retenues doit être moins dangereux que l'acide borique pour la sécurité et la santé des travailleurs.

L'application successive de ces 5 critères aux éléments chimiques neutrophages candidats (cadmium, dysprosium, erbium, europium, gadolinium, hafnium, indium, iridium, samarium), n'a permis de sélectionner aucun élément chimique ou aucune substance dérivée de ces derniers qui ne satisfasse

parfaitement tous les critères exigés pour le remplacement de l'acide borique. Il en a été conclu par EDF qu'en l'état actuel des connaissances, le remplacement de l'acide borique dans le circuit primaire des CNPE, et la réduction de la production de tritium en découlant, était techniquement irréalisable.

Par ailleurs, EDF étudie également les meilleures techniques disponibles (MTD) pour limiter l'impact de ses rejets de tritium.

Des études ont ainsi été réalisées afin d'examiner la possibilité de réduire l'activité en tritium rejetée sous forme liquide, par l'utilisation de la décroissance radioactive par stockage dans des bâches. Mais cette solution aurait nécessité des quantités de stockage telles qu'elle n'aurait pu se faire à un coût raisonnable. Elle aurait par ailleurs engendré des risques supplémentaires, pour un gain dosimétrique négligeable.

Ensuite une action importante d'optimisation des rejets de tritium sous forme gazeuse a récemment pu être réalisée. Elle est partie du constat que les rejets de tritium gazeux étaient beaucoup plus importants sur les CNPE du palier 1300 MW que sur les sites des autres paliers (900 et 1450 MW). L'origine de cette différence a été identifiée en 2005 sur le site de Cattenom où il a été démontré qu'une part importante du tritium gazeux provenait de l'évaporation dans des bâches de traitement des effluents du circuit primaire. Une campagne de modification a été lancée sur l'ensemble des CNPE du même palier afin de réduire l'évaporation dans ces bâches par la diminution du débit de ventilation. Ces modifications se sont achevées fin 2008 et commencent à montrer des résultats positifs.

Cette diminution des rejets gazeux de tritium est d'autant plus bénéfique que l'impact dosimétrique des rejets de tritium est plus important sous forme gazeuse que liquide. A titre d'exemple, pour le site de Paluel<sup>3</sup>, comportant 4 réacteurs de 1300 MW, la dose efficace reçue par le public est de l'ordre de 9,8 nano-sievert pour un rejet annuel de 1,0 TBq de tritium gazeux, contre 0,034 nano-sievert pour le groupe de référence non-pêcheur (0,071 nano-sievert pour le groupe pêcheur) pour un rejet de 1,0 TBq de tritium liquide.

Cet impact dosimétrique plus important des rejets gazeux de tritium, a poussé EDF à faire le choix de minimiser les rejets de tritium gazeux, en privilégiant les rejets de tritium par voie liquide.

Cela s'est traduit par la rédaction, en 2007, d'une doctrine de gestion du tritium, qui vise à :

- Réduire au maximum les rejets de tritium par voie atmosphérique et rejeter préférentiellement ce radionucléide par voie liquide.
- Déconcentrer le tritium du circuit primaire en cas de fuite entre les circuits primaire et secondaire pour limiter le transfert du tritium vers le circuit secondaire.
- Eviter la dissémination du tritium dans les bâches ou piscines en arrêt de tranche en réalisant une dilution du circuit primaire en fin de cycle.

## 5 | Surveillance du tritium dans l'environnement autour des CNPE

Chaque année, dans le cadre de la surveillance réglementaire de l'environnement réalisée en routine par EDF autour de ses CNPE, près de 20 000 mesures de tritium dans les eaux sont réalisées (sur des prélèvements d'eaux de mer, de rivière, de pluie, d'eaux souterraines) ainsi que près de 800 mesures de tritium atmosphérique.

Figure 2 : Prélèvement dans l'environnement. Source EDF.



Depuis février 2009, toutes les mesures de tritium sont réalisées selon les normes internationales en vigueur pour ce radionucléide par des laboratoires agréés par l'ASN selon la norme ISO 17025 (référentiel adopté par l'ASN dans le cadre du Réseau National de Mesure). Ces données figurent dans les registres réglementaires mensuels aux côtés de nombreuses autres mesures de radioactivité de l'environnement et seront disponibles et accessibles au public sur le site Internet du Réseau National de Mesure dès janvier 2010 (sur <http://www.mesure-radioactivite.fr>).

Parallèlement, et en complément des mesures réglementaires, EDF fait réaliser des mesures de tritium dans le cadre de ses suivis radioécologiques annuels depuis 1992. Ces mesures sont confiées à des laboratoires extérieurs et à l'IRSN. Les mesures réalisées concernent les différents compartiments du milieu récepteur. En complément, il convient de noter qu'EDF a récemment décidé d'ajouter des mesures de tritium organique sur des matrices végétales et animales dans ce cadre. Enfin, tous les 10 ans, des bilans décennaux viennent compléter et approfondir les suivis radioécologiques annuels en mettant l'accent sur des radionucléides à demi-vie longue, difficilement ou non détectés en spectrométrie gamma comme le tritium organiquement lié (Figure 3).

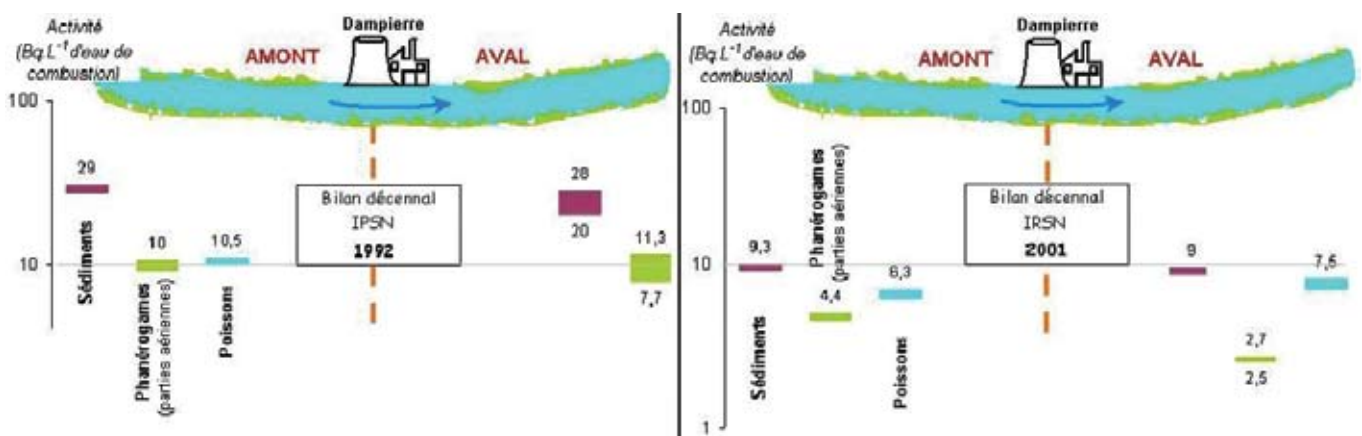
Optimisés au cours du temps, les suivis et bilans radioécologiques réalisés ont une double fonction d'étude et de suivi, dans le temps et dans l'espace. Ils visent à évaluer de façon fine les activités des radionucléides naturels et artificiels d'origines diverses (essais militaires atmosphériques, Tchernobyl, ...) que l'on peut trouver dans les différents compartiments des écosystèmes terrestres et aquatiques dans le but d'avoir une image représentative de la radioactivité autour des installations d'EDF. Les données issues de ces études figurent dans le rapport annuel de suivi de l'environnement qui est accessible au public sur simple demande.

Ces mesures montrent que l'influence des rejets de tritium gazeux des CNPE n'est pas perceptible dans l'écosystème terrestre. Les activités mesurées restent très proches de celle de la vapeur d'eau atmosphérique mesurée en l'absence de toute influence industrielle. Ainsi, les activités en tritium libre sont actuellement de l'ordre de quelques becquerels par litre dans le lait et les végétaux.

Dans les cours d'eau, du fait des rejets autorisés d'effluents radioactifs liquides, l'influence des rejets tritiés des CNPE d'EDF est perceptible, en particulier en Loire et dans les rivières à faibles débits (Vienne, Meuse, Moselle, Seine). Le tritium dans l'eau libre des végétaux aquatiques peut y atteindre transitoirement plusieurs dizaines de becquerels par litre si le prélèvement est réalisé au moment d'une opération de rejet d'un réservoir d'effluents radioactifs.

Dans les sédiments, on constate dans certains cours d'eau, en amont comme en aval des installations, des activités en tritium organique plus élevées que dans les autres compartiments. Les teneurs maximales ont été observées dans le Rhône en amont de Creys-Malville et dans le Rhin en amont de Fessenheim avec des activités de 3000 Bq.L<sup>-1</sup> à 8000 Bq.L<sup>-1</sup> d'eau de combustion. L'hypothèse d'un marquage par des composés organiques tritiés utilisés dans l'industrie horlogère (cadres lumineux) pourrait expliquer ces observations.

Figure 3 : Evolution des mesures entre deux bilans décennaux. Source EDF [4].



Le long des côtes françaises de la Manche, les mesures de tritium dans l'eau libre des algues mettent en évidence que les rejets des CNPE en Manche (Flamanville, Paluel, Penly, Gravelines) contribuent certes au niveau observé, mais représentent une faible part des rejets tritiés en Manche. Ces activités varient de l'ordre de  $15 \text{ Bq.L}^{-1}$  à Flamanville à  $3 \text{ Bq.L}^{-1}$  à Gravelines (influence de l'éloignement de La Hague). Les activités dans la matière organique des organismes marins des eaux normandes sont du même ordre de grandeur que celles dans l'eau, en cohérence avec des rejets industriels sous forme d'eau tritiée (HTO).

Les activités en tritium dans les eaux marines de la zone dite OSPAR (zone maritime correspondant approximativement aux eaux côtières européennes de l'Atlantique du nord et du nord-est, à l'exception de la mer baltique), atteignent des niveaux de l'ordre du becquerel par litre dans les zones éloignées des côtes, c'est-à-dire similaires aux activités d'origine naturelle.

## 6 | Interprétation des mesures des différentes formes de tritium dans l'environnement autour des CNPE

Dans l'environnement, le tritium des CNPE est majoritairement rejeté sous forme d'eau tritiée (HTO) [1]. Sous cette forme, il peut à la suite de réactions métaboliques complexes comme la photosynthèse être incorporé à des composés organiques. Ainsi l'activité spécifique de la matière organique, exprimée en nombre d'atomes de tritium par rapport au nombre d'atomes d'hydrogène, ou en becquerel de tritium par gramme d'hydrogène, va tendre vers celle de l'eau.

Ce tritium organiquement lié (OBT pour Organically Bounded Tritium) peut ensuite être transféré à d'autres compartiments de l'écosystème via la chaîne alimentaire.

La mesure du tritium libre (HTO) dans l'eau extraite des végétaux fournit ainsi une valeur ponctuelle, image de la concentration dans l'eau ou dans l'air ambiant au moment du prélèvement.

La mesure du tritium lié à la matière organique (OBT) des végétaux incorporés lors de la photosynthèse et par les animaux permet, quant à elle, d'avoir une information rétrospective sur l'activité moyenne en tritium de l'eau ou de l'air sur toute la période de formation de la matière organique.

Ainsi, les observations effectuées sur le terrain confirment sur les mesures de tritium HTO et OBT que le tritium ne se « concentre » pas isotopiquement, comme le montrent les mesures réalisées sur les végétaux et les animaux des écosystèmes aquatiques en Manche depuis une dizaine d'année [2].

Enfin les expérimentations sur le tritium libre et le tritium organique réalisées sur les végétaux terrestres et aquatiques et sur les espèces animales montrent que le tritium ne se concentre pas non plus dans la chaîne alimentaire [3].

## 7 | Modélisation et évaluation de l'exposition due au tritium

La dose attribuable au tritium chez l'homme résulte de l'incorporation d'eau tritiée et de molécules organiques tritiées. En comparaison avec l'eau tritiée, l'exposition au tritium gaz est négligeable. L'exposition externe est nulle en raison des caractéristiques physiques de ce radionucléide (rayonnement de faible énergie).

En raison de la taille plus grosse de l'atome de tritium par rapport à l'atome d'hydrogène, l'incorporation du tritium à la matière organique

est légèrement inférieure à celle de l'hydrogène. Néanmoins, pour rester majorantes, les différentes modélisations retenues pour calculer l'impact des rejets de tritium des CNPE ne tiennent pas compte de cette différence et considèrent que les atomes de tritium ont exactement le même comportement que les atomes d'hydrogène lors de la photosynthèse.

Sur ces bases, les calculs d'impact dosimétrique sont réalisés en tenant compte des activités rejetées, sous forme liquide et gazeuse, et de différents paramètres liés à l'environnement de chaque site (météorologie, habitudes alimentaires, dispersion/dilution dans le milieu récepteur) et des différentes voies d'exposition pour l'homme comme l'ingestion d'aliments et d'eau ou l'exposition externe. Ainsi pour les CNPE de bord de mer, le modèle prend en compte la consommation de produits marins pêchés dans un rayon de 500 mètres autour du CNPE et inclut des expositions externes dues à 100 heures par an passées sur la plage et 20 heures par an de baignade avec ingestion d'eau de mer. Le modèle considère d'une part le tritium sous forme d'eau tritiée et d'autre part le tritium incorporé à la matière organique.

Ces évaluations montrent que les rejets de tritium des CNPE d'EDF ne contribuent que de manière marginale (« trivial » au sens de la CIPR<sup>4</sup>) à l'exposition du public. En effet, la contribution du tritium varie entre une dizaine de nano-sievert et quelques centaines de nano-sievert par an [4, 5], suivant les sites et les années, mais reste toujours inférieure à 1 microSv par an (1000 nano-sievert). Cette exposition est bien sûr à comparer avec la limite réglementaire de 1000 microSv par an pour le public et à l'exposition moyenne attribuable à la radioactivité naturelle en France de 2400 microSv par an.

### RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Bernard Le Guen (2008). Impact du tritium autour des centrales nucléaires d'EDF. Revue Radioprotection 2008, volume 43. EDP Science.
- [2] M. Masson, B. Fiévet, P. Bailly-Du-Bois, L. Tenailleau, A. Olivier (2009). Le Tritium en Manche. Journées SFRP sur le tritium, 22 et 23 septembre 2009.
- [3] Y. Belot, M. Roy, H Métivier (1996). Le tritium de l'environnement à l'homme. Les éditions de physiques, Les Ulis.
- [4] Bilan radioécologique de l'environnement terrestre et aquatique du CNPE de Dampierre-en-Burly (1977-2007), ELIER0800887A.
- [5] B. Le Guen, V. Chrétien, P.Y. Hémidy, M.J. Sagot (2009), Rejets de tritium et impact autour des Centres Nucléaires de Production Électricité d'EDF. Journées SFRP sur le tritium, 22 et 23 septembre 2009.

<sup>4</sup> Commission internationale de protection radiologique.