

ETUDE DU TRANSFERT DU TRITIUM AUX VEGETAUX VIA LES RATIOS OBT/HTO ET OBT/TFWT

C. Boyer^{1,2,3}, P. Guétat¹, M. Fromm², L. Vichot¹, Y. Losset¹,
F. Tatin-Froux³, C. Mavon², P.M. Badot³

¹ UMR CEA E4, VALDUC, F-21120 Is-sur-Tille,

² UMR CEA E4, Université de Franche-Comté, 16 route de Gray, F-25030 Besançon cedex

³ CNRS-Université de Franche Comté / UMR 6249 Chrono-environnement usc INRA,
Place Leclerc, F-25030 Besançon cedex

Introduction

L'eau joue un rôle biologique fondamental dans le développement et le métabolisme des végétaux. A l'échelle de la plante, elle assure le transport des sels minéraux et de molécules organiques entre organes. Constituant majeur du milieu cellulaire, elle participe directement ou indirectement à toutes les réactions biochimiques, notamment celles liées à la formation de matière organique. La photolyse de l'eau, une étape clé de la photosynthèse, produit par exemple des protons et des radicaux hydroxyles qui peuvent être incorporés dans les molécules organiques. Le tritium est l'un des 3 isotopes de l'hydrogène. Il se comporte globalement de la même façon que cet élément dans l'environnement naturel. Sous forme d'eau tritiée, il est associé à toutes les molécules hydrogénées des plantes via les réactions métaboliques. De ce fait, les activités spécifiques dans l'eau tissulaire des plantes et dans la matière organique, en réponse à une exposition continue au tritium, devraient théoriquement être égales. Une étude bibliographique et expérimentale a été menée sur ce thème.

I. Rappel des concepts

On appelle « eau libre » d'un végétal l'eau extraite de la plante, par un moyen de distillation, sans altération de la matière organique. Elle comprend l'eau intracellulaire et l'eau des vaisseaux conducteurs de sèves. L'eau libre représente en moyenne plus de 70% de la masse des parties non lignifiées des plantes [1]. Placé dans une atmosphère contenant de la vapeur d'eau tritiée, l'eau libre des feuilles se charge et se décharge assez rapidement en tritium, avec une demi-vie biologique de l'ordre de quelques heures pendant la journée, révélant une diffusion de l'eau de l'air vers l'eau contenue dans la plante, principalement à travers les stomates, malgré un flux d'eau essentiellement sortant. On note cette fraction TFWT pour « *Tissue Free Water Tritium* ».

Des molécules d'eau libre peuvent entrer dans des chaînes de réactions biochimiques et leur hydrogène peut ainsi être incorporé lors de l'élaboration de molécules organiques. Ceci se produit en particulier lors de la photosynthèse, mais aussi lors de nombreux processus métaboliques secondaires. Compte tenu de la quantité très importante d'eau évacuée par transpiration, moins de 5% de l'eau absorbée est finalement mobilisée pour la croissance et le développement des végétaux. Une fraction encore moindre intervient directement dans les réactions biochimiques [1]. Finalement, la fraction d'hydrogène convertie en matière organique est de 0,06% à 0,3% pour les plants en développement [2]. On appelle « eau de combustion » l'eau obtenue en brûlant la matière sèche en présence d'oxygène et en absence d'autre source d'eau pendant la combustion. L'eau de combustion ne contient ainsi que de l'hydrogène issu de la matière organique, qui représente 5 à 10% de la matière sèche. Le comportement biochimique du tritium ³H peut être considéré en première approximation comme équivalent à celui de son isotope stable, le protium ¹H. Ainsi, l'incorporation de tritium organique s'effectue progressivement au cours de la croissance du végétal, et de ce fait l'eau de combustion représente une valeur moyenne sur le temps de

croissance du végétal. Il est d'usage de parler de « Tritium Organiquement Lié » (noté OBT pour « *Organically Bound Tritium* »), lorsqu'il est inclus dans les molécules organiques.

II. Etude bibliographique

Le ratio d'activité spécifique est un moyen de quantifier les phénomènes de fractionnement isotopique. Il correspond au ratio des activités spécifiques ($^3\text{H}/^1\text{H}$) du tritium organique (OBT) et de l'eau tritiée (HTO) dans un compartiment biologique ou écologique donné. Ce ratio peut être établi par rapport à l'activité de l'eau tritiée dans l'environnement (OBT/HTO) ou dans l'eau tissulaire de la plante (OBT/TFWT) [3]. Sa valeur par rapport à l'unité est un indicateur de la capacité des systèmes biologiques à discriminer les isotopes 1 et 3 de l'hydrogène lors de l'incorporation dans les molécules organiques. A partir de ces définitions, certains auteurs ont évalué expérimentalement les valeurs du ratio d'activité spécifique OBT/HTO (de la vapeur d'eau de l'air ou de la solution du sol) et du ratio OBT/TFWT pour différentes espèces végétales soumises à une exposition de longue durée au tritium. Une liste non exhaustive de ces valeurs est donnée dans le Tableau 1.

Espèce végétale	Organe	OBT/HTO	OBT/TFWT	Référence
Luzerne (<i>Medicago sativa</i> L.)		0,78		[4]
orge (<i>Hordeum vulgare</i> L.)		0,73		[5]
		0,52 – 0,57		[6, 7]
maïs (<i>Zea mays</i> L.)		0,64		[5]
		0,14 – 0,39		[6, 7]
herbes		0,19 – 0,31	0,52	[6, 7]
laitue (<i>Lactuca sativa</i> L.)		0,41	0,68	[6, 7]
radis (<i>Raphanus sativus</i> L.)	racines	0,25	0,46	[6, 7]
fourrage		0,33 – 0,56		[6, 7]
blé de printemps (<i>Triticum aestivum</i> L.)		0,18 – 0,25		[6, 7]
	fruits	0,43	0,72	[6, 7]
	feuilles jeunes	0,30	0,70	
	feuilles âgées	0,29	0,63	[8]
tomates (<i>Solanum lycopersicum</i> L.)	fruits verts	0,27	0,72 – 1,92	
oranges, pommes, bananes, melons, kiwis, fraises	fruits		1,5*	[9, 10]
Céréales excepté riz (blé, maïs)			1,6	[9, 10]
Pomme de terre (<i>Solanum tuberosum</i> L.)			1,1	[9, 10]
épinards, carottes, choux chinois, piments doux, poivrons	Parties comestibles		[1,0 – 1,5]	[9, 10]
			1,2*	
radis, oignons, tomates, concombres, choux, haricots, choux-fleurs, champignons	Parties comestibles		4,3	[9, 10]
Soja (<i>Glycine max</i>)			1,9	[9, 10]
Riz (<i>Oryza sativa</i> L.)			[0,33 – 1,49]	[11]
			0,83*	

[] : gamme des résultats obtenus, * : moyenne des résultats obtenus

Tableau 1 : Ratios d'activité spécifique entre l'activité en tritium organique et l'activité de la vapeur d'eau atmosphérique ou de l'eau du sol (OBT/HTO) et entre l'activité en tritium organique et l'activité de l'eau tissulaire (OBT/TFWT), donnés dans la littérature pour différentes espèces végétales.

Le ratio OBT/TFWT est toujours plus élevé que le ratio OBT/HTO car l'activité tritium de l'eau tissulaire des végétaux (TFWT) n'atteint jamais celle de la vapeur d'eau tritiée de l'air ou de l'eau du sol (HTO). Les données de la littérature font apparaître des valeurs globalement comprises entre 0,5 et 2 pour le rapport OBT/TFWT, et environ deux fois moins élevées pour le rapport OBT/HTO. Ces valeurs proches de l'unité ne permettent pas de

conclure à une discrimination du tritium par rapport à l'hydrogène lors de son incorporation à la matière organique des plantes, d'autant qu'on observe une grande variabilité des résultats obtenus par les auteurs. Outre des conditions expérimentales très différentes (température, hygrométrie, lumière) pouvant influencer sur les mécanismes d'absorption et d'intégration du tritium, les mécanismes biologiques propres à chaque espèce ou organe peuvent également expliquer la variabilité des ratios d'activité spécifique. En effet, les fruits et les tubercules stockent les assimilats organiques, et par conséquent de l'OBT, alors que ce n'est pas la fonction principale des feuilles ou des racines. De ce fait, les valeurs des ratios supérieures à 1 dans certains organes tels que les fruits ne sont pas dues à un enrichissement isotopique en faveur du tritium mais au phénomène de translocation des molécules organiques vers certains organes.

Les modèles de calcul utilisés au CEA (gazaxi, ceres) n'utilisent pas de facteur de discrimination isotopique, autre que celui lié à l'évaporation (0,91). Il est apparu intéressant d'examiner les éléments disponibles sur le site de Valduc afin de comparer les valeurs obtenues à celles de la littérature et de juger de l'opportunité de modifier ou non les modèles actuellement utilisés.

III. Etude expérimentale

Deux séries d'expositions de plants de laitue (EXT-1 et EXT-2) ont été réalisées en extérieur sur le site de Valduc afin d'étudier les transferts du tritium au végétal en conditions réelles. Ces expériences ont été menées sous serre, en période estivale, à 360 m sous les vents par rapport à un point de rejet gazeux de tritium, et durant plusieurs semaines de façon à atteindre un état de pseudo-équilibre. Les teneurs atmosphériques moyennes en tritium (HT et HTO) mesurées sur ce site sont faibles (de l'ordre de 10 Bq m^{-3}). Pour chaque expérience, un échantillon représentatif des laitues a été prélevé de façon hebdomadaire en début de croissance, puis tous les 3 à 4 jours à partir de la phase de croissance exponentielle. Les mesures des activités tritium dans la vapeur d'eau de l'air, dans l'eau tissulaire et dans la matière organique des plants sont présentées en Figure 1. Pour chaque échantillon, les ratios OBT/HTO et OBT/TFWT ont été établis à partir des valeurs d'activités moyennes mesurées dans l'eau tissulaire ou dans la vapeur d'eau de l'air sur la période d'exposition. Les valeurs moyennes des ratios pour chaque série expérimentale, ainsi que les écart-types associés, sont présentés dans le Tableau 2.

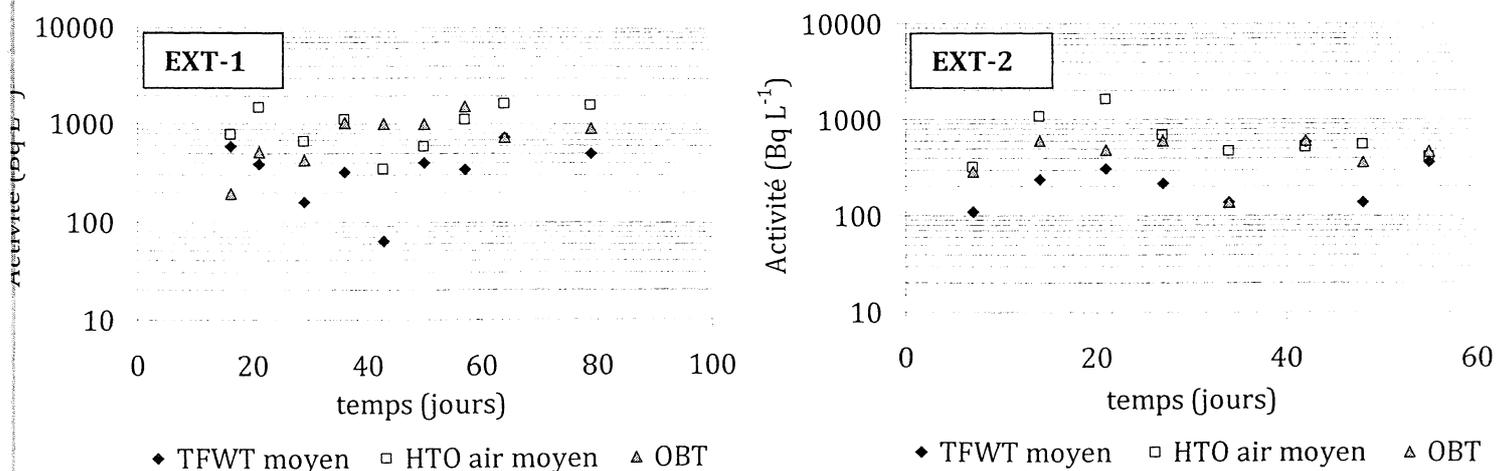


Figure 1 : Représentation graphique (échelle logarithmique) des activités HTO moyennes mesurées dans la vapeur d'eau de l'air (HTO air moyen) et dans l'eau tissulaire de plants de laitue (TFWT moyen) sur la période d'exposition, et des activités OBT dans l'eau de combustion de la matière organique (OBT) mesurées lors de deux expériences d'exposition continue en conditions climatiques réelles sur le site de Valduc (EXT-1 et EXT-2).

expérience	nombre d'échantillons	HTO air moyen (Bq L ⁻¹ eau de l'air)	OBT/HTO	OBT/TFWT
EXT-1	9	1080	0,9 ± 0,5	2,1 ± 1,2
EXT-2	8	700	0,6 ± 0,2	2,1 ± 0,8

Tableau 2 : Ratios d'activité spécifique moyens entre l'activité en tritium organique et l'activité de la vapeur d'eau atmosphérique (OBT/HTO) et entre l'activité en tritium organique et l'activité de l'eau tissulaire (OBT/TFWT), obtenus lors de deux expériences d'exposition continue de plants de laitue, en conditions climatiques réelles sur le site de Valduc.

Comme attendu, l'activité de l'eau libre des plants présente des valeurs inférieures mais suit l'évolution de l'activité de la vapeur d'eau de l'air (figure 1). L'activité de l'eau de combustion correspond à une activité moyenne pondérée sur le temps précédent le prélèvement. Il n'est de ce fait pas étonnant de trouver d'une part une plus grande stabilité de la teneur en tritium organique, d'autre part une fluctuation importante des ratios dès lors que l'activité de la vapeur d'eau de l'air diminue ou augmente fortement. L'eau de combustion présente une activité moyenne proche de celle de la vapeur d'eau de l'air, alors que l'eau libre se trouve inférieure d'un facteur 2 environ. Dans les calculs d'impacts réalisés au CEA, l'activité en tritium de l'eau de combustion issue de la matière organique est pratiquement égale à celle de la vapeur d'eau de l'air et de l'eau libre. Dans les cas considérés ici, il y aurait dans les calculs une surestimation de l'activité de l'eau libre.

Conclusion

Compte tenu des rapports d'activités OBT/HTO ou OBT/TFWT donnés dans la littérature pour différentes espèces végétales et des expériences présentées précédemment, il n'est pas possible dans l'état actuel des connaissances de conclure à une discrimination du tritium par rapport à l'hydrogène lors de son incorporation à la matière organique des plantes. Des expériences menées sur divers végétaux montrent des variations importantes en fonction de l'espèce, de l'organe et des conditions expérimentales. Il semble donc prudent de rester sur l'hypothèse d'une équivalence des comportements de l'hydrogène et du tritium impliqués dans les réactions métaboliques des végétaux, ce qui se traduit notamment par un ratio des activités spécifiques de l'hydrogène de la matière organique et de l'eau tissulaire proche de 1. Néanmoins, les processus d'intégration du tritium au sein d'une plante se déroulent dans un système ouvert, fonctionnent et peuvent changer au cours du temps. Des discriminations au niveau d'un organe particulier ou d'une phase de développement de la plante pourraient ainsi apparaître.

Références bibliographiques

- [1] Hopkins, W.G., 1995. Introduction to Plant Physiology. John Wiley & Sons, Inc.
- [2] Kramer, P.J., 1969. Plant and soil water relationships. McGraw-Hill Book Co. Inc.: New York.
- [3] Kim, M.A. and F. Baumgärtner, 1994. Equilibrium and non-equilibrium partition of tritium between organics and tissue water of different biological systems. *Appl. Rad. Isotopes*, 45, p. 353-360.
- [4] McFarlane, J.C., 1976. Tritium fractionation in plants. *Env. Exp. Botany*, 16, p. 9-14.
- [5] Garland, J.A. and M. Ameen, 1979. Incorporation of tritium in grain plants. *Health Physics*, 36, p. 35-38.
- [6] Davis, P.A., T.G. Kotzer, and W.J.G. Workman, 2002. Environmental Tritium Concentrations due to continuous atmospheric sources. *Fus. Sci. Technol.*, 41, p. 453-457.
- [7] Davis, P.A., et al., 2005. Observed and modeled tritium concentrations in the terrestrial food chain near a continuous atmospheric source. *Fus. Sci. Technol.*, 48 (1), p. 504-507.
- [8] Spencer, F.S., 1984. Tritiated water uptake kinetics in tissue-free water and organically-bound fractions of tomato plants, Ontario Hydro Research Division, Report 84-69-K.
- [9] Hisamatsu, S., et al., 1987. Fallout 3H ingestion in Akita, Japan. *Health Physics*. 53, p. 287-293.
- [10] Hisamatsu, S., T. Katsumata, and Y. Takizawa, 1991. Tritium concentration in unpolished rice. *J. Rad. Res.*, 32, p. 389-394.
- [11] Inoue, Y. and T. Iwakura, 1990. Tritium concentration in Japanese rice. *J. Rad. Res.*, 31, p. 311-323.