

**IRSN**

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

## Évaluation des doses dues au $^{14}\text{C}$ , depuis la fin des années 1950, en France métropolitaine

S. Roussel-Debet

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT  
ET DE L'INTERVENTION

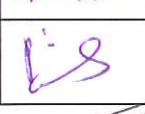
SERVICE D'ÉTUDE ET DE SURVEILLANCE DE LA RADIOACTIVITÉ DANS  
L'ENVIRONNEMENT

Demandeur	
Référence de la demande	
Numéro de la fiche programme	

### Évaluation des doses dues au $^{14}\text{C}$ , depuis la fin des années 1950, en France métropolitaine

Laboratoire d'Étude Radioécologique du milieu  
Continental et Marin

Rapport DEI/SESURE n° 2006 - 09

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur*	Chef du SESURE	Directeur DEI	Directeur Général de l'IRSN
Noms	S. Roussel-Debet	P. Renaud	N. Lemaitre	D. Champion	J. REPUSSARD
Dates	31/5/06	09/05/06	16/05/06	19/05/06	
Signatures					

\* rapport sous assurance de la qualité

---

---

## HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Description ou commentaires
V0	27/01/06	S. Roussel-Debet	Version initiale
V1	31/01/06	S. Roussel-Debet	Prise en compte des remarques de P. Renaud
V2	09/05/06	S. Roussel-Debet	Prise en compte des remarques de N. Lemaitre (ajout des mesures de plateaux-repas du Vésinet).

---

---

## PARTICIPANTS A CETTE ETUDE

Nom		Organisme
Sylvie Roussel-Debet	Rédaction	IRSN/DEI/SESURE/LERCM

---

---

**LISTE DE DIFFUSION**

Nom	Organisme
J. REPUSSARD	IRSN/DIR
M. BRIERE	IRSN/DIR
M. BOUVET	IRSN/DSDRE
J. LEWI	IRSN/DESTQ
MP. BIGOT	IRSN/COM
F. SOULET	DESTQ/DISCT/CRIS
D. CHAMPION	DEI/DIR
D. BOULAUD	DEI/DIR
B. DUFER	DEI/DIR
J.M. PERES	DEI/SARG
JC. GARIEL	DEI/SECRE
P. DUBIAU	DEI/SESUC
J.P. MAIGNE	DEI/SIAR
M.C. ROBE	DEI/STEME
B. DESCAMPS	DEI/SESURE/LESE
P. CUENDET	DEI/SESURE/LVRE
P. RENAUD	DEI/SESURE/LERCM

<b>1 INTRODUCTION.....</b>	<b>7</b>
<b>2 MODELISATION DU TRANSFERT DU CARBONE 14 ET DE L'EXPOSITION .....</b>	<b>7</b>
2.1 FONDEMENT DES MODELES .....	7
2.2 ACTIVITE SPECIFIQUE DE L'ATMOSPHERE .....	8
2.2.1 Valeurs de la littérature.....	8
2.2.2 Valeurs retenues pour les évaluations de dose.....	11
2.3 VOIES D'ATTEINTE CONSIDEREES - METHODE DE CALCUL.....	12
2.3.1 Équations de calcul de la dose par ingestion .....	12
2.3.2 Valeurs et origine des paramètres.....	13
2.3.3 Formulation simplifiée du calcul de dose par ingestion .....	17
2.3.4 Estimation des doses par inhalation.....	17
2.3.4.1 Évaluation de l'activité volumique de l'air.....	17
2.3.4.2 Dose par inhalation, pour l'adulte.....	19
<b>3 RESULTATS ET DISCUSSION .....</b>	<b>19</b>
3.1 DOSE EFFICACE ANNUELLE .....	19
3.2 COMPARAISON AVEC LES DONNEES DE L'UNSCEAR .....	22
3.3 DOSE EFFICACE CUMULEE.....	23
<b>4 CONCLUSION.....</b>	<b>24</b>
<b>5 BIBLIOGRAPHIE.....</b>	<b>25</b>
<b>6 ANNEXE.....</b>	<b>27</b>
6.1 FRACTIONNEMENT ISOTOPIQUE.....	27
6.2 UNITES ASSOCIEES .....	28

## Tableaux

Tableau 1 : Activité spécifique du $^{14}\text{C}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) dans l'environnement terrestre selon diverses sources bibliographiques.....	9
Tableau 2 : Valeurs de l'activité spécifique du $^{14}\text{C}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) retenues pour les évaluations de dose.....	11
Tableau 3 : Facteurs de dose efficace du $^{14}\text{C}$ par ingestion.....	15
Tableau 4 : Quantités d'aliments ingérées annuellement.....	15
Tableau 5 : Fraction de carbone des aliments.....	15
Tableau 6 : Masse totale de carbone ingérée annuellement.....	15
Tableau 7 : Facteur de conversion $FD_{\text{ing,a}} \times \sum_i R_{i,a} \times f_{c,i}$ ( $\text{Sv.an}^{-1}$ par $\text{Bq.kg}^{-1}$ ).....	16
Tableau 8 : Résumé des valeurs de dose efficace annuelle par ingestion ( $\mu\text{Sv.an}^{-1}$ ) par tranches d'âge.....	19

## Figures

Figure 1 : Évolution de l'activité spécifique du $^{14}\text{C}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) dans l'environnement terrestre en fonction du temps.	8
Figure 2 : Matrice globale d'interactions relative au $^{14}\text{C}$ .....	12
Figure 3 : Proportion de carbone ingéré avec les différents composants de la ration (en % du carbone total ingéré annuellement).....	16
Figure 4 : Évolution de la concentration du $\text{CO}_2$ de l'atmosphère (Keeling et Whorf, 2001).....	18
Figure 5 : Estimation de l'évolution de l'activité volumique de l'atmosphère en $^{14}\text{C}$ .....	18
Figure 6 : Dose annuelle liée à l'ingestion de carbone 14, par tranches d'âge.....	20
Figure 7 : Dose efficace par ingestion, pour l'adulte calculées selon la méthode simplifiée de l'AIEA (2001).....	21
Figure 8 : Dose efficace par inhalation, pour l'adulte.....	21
Figure 9 : Comparaison de la dose efficace par ingestion pour l'adulte estimée dans la présente étude avec les résultats de l'UNSCEAR (2000).....	22
Figure 10 : Dose cumulée liée à l'ingestion de carbone 14, par générations.....	23

## 1 Introduction

Une estimation des conséquences dosimétriques en France, entre 1961 et 1978, des retombées des essais aériens d'armes a été réalisée par Vray et Renaud (2005). Cette estimation, basée sur les résultats de mesure des produits de fission et d'activation dans l'environnement, est complétée par la présente étude, plus théorique, qui prend en compte le carbone 14.

Le carbone a deux isotopes stables : le carbone 12 et le carbone 13, d'abondances respectives 98,93 % et 1,07 %. Le carbone 14, radio-isotope de période  $5\,730 \pm 40$  ans, est émetteur  $\beta^-$  ( $E_{\max} \cong 156,5$  keV) et n'est présent qu'en quantités infinitésimales (l'activité spécifique de l'isotope 14 est d'environ  $1,65 \times 10^{-11}$  Bq.g<sup>-1</sup>).

Le <sup>14</sup>C est produit naturellement dans la haute atmosphère à partir de l'azote <sup>14</sup>N. L'UNSCEAR (2000) évalue que cette production cosmogénique est d'environ 1,54 PBq.an<sup>-1</sup> (1) pour un inventaire mondial estimé à 230 PBq ; à ce radiocarbone naturel, se sont ajoutés de l'ordre de 213 PBq émis lors des essais nucléaires atmosphériques ; en outre, les centrales électronucléaires et les usines de retraitement ont produit de l'ordre de 2,8 PBq de <sup>14</sup>C entre les années 1950 et 1997 (UNSCEAR, 2000).

## 2 Modélisation du transfert du carbone 14 et de l'exposition

### 2.1 Fondement des modèles

L'évaluation des transferts du carbone 14 entre deux compartiments de la biosphère est basée sur l'hypothèse consensuelle que :

- le radiocarbone atmosphérique se trouve sous forme de <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> car les rejets sont supposés se trouver sous cette forme et, dans tous les cas, l'oxydation des autres composés carbonés aboutit en quelques années à cette forme (UNSCEAR, 2000) ;
- l'activité spécifique du carbone des végétaux (Becquerels de <sup>14</sup>C par unité de masse de carbone) est la même que celle de l'atmosphère (incorporation par photosynthèse) ;
- cet équilibre isotopique est conservé dans tous les compartiments de la chaîne trophique.

Tous les modèles explicites ou agrégés (e.g., Le Dizés, 2005 ; AIEA, 2001 ; Sheppard et al., 1994 ; AIEA, 1982 et 1985 ; OMS, 1987...) reposent sur ce postulat classique dont l'expression générale est la suivante :

$$\frac{{}^{14}\text{C}_{\text{organisme}}}{\text{C}_{\text{organisme}}} = \frac{{}^{14}\text{C}_{\text{milieu}}}{\text{C}_{\text{milieu}}} \quad (\text{Équation 1})$$

<sup>14</sup> C <sub>organisme</sub>	Activité massique du <sup>14</sup> C dans l'organisme (Bq.kg <sup>-1</sup> )
C <sub>organisme</sub>	Concentration en carbone dans l'organisme (kg de C .kg <sup>-1</sup> )
<sup>14</sup> C <sub>milieu</sub>	Activité massique du <sup>14</sup> C dans le milieu contaminant (Bq.kg <sup>-1</sup> )
C <sub>milieu</sub>	Concentration en carbone dans le milieu contaminant (kg de C.kg <sup>-1</sup> )

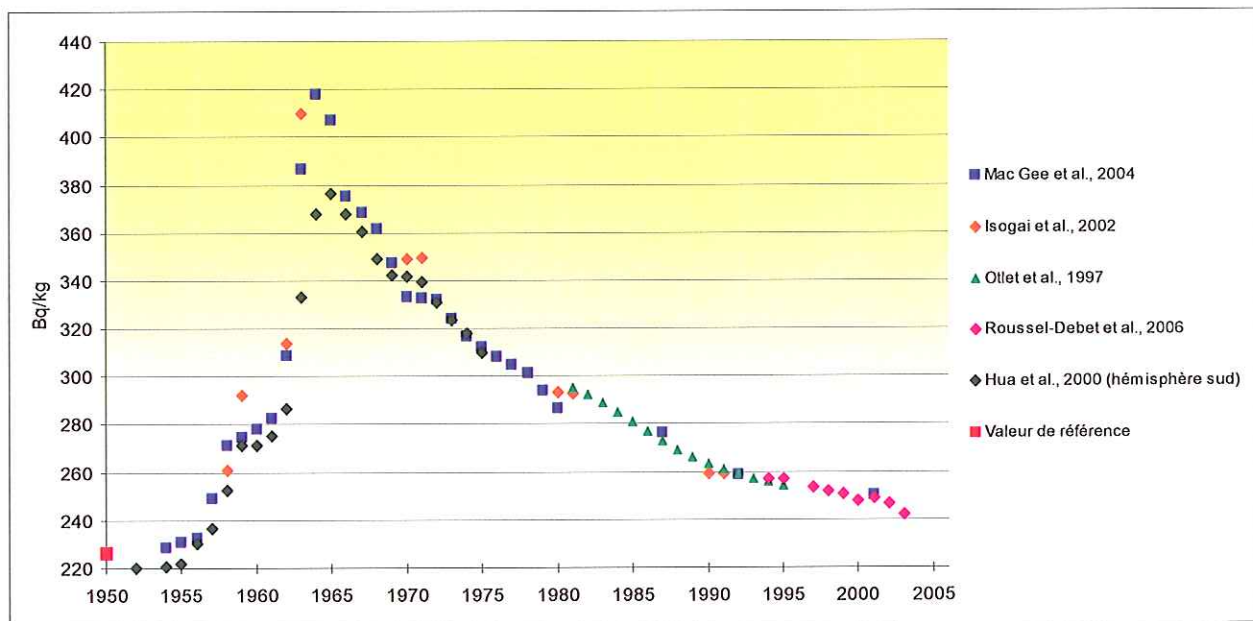
<sup>1</sup> 1 PBq = 10<sup>15</sup> Bq

Cette modélisation néglige la discrimination isotopique qui se produit lors de la photosynthèse, ce qui est majorant d'environ 5 % (cf. annexe).

## 2.2 Activité spécifique de l'atmosphère

### 2.2.1 Valeurs de la littérature

Il est communément admis qu'il est possible de déterminer l'activité spécifique du carbone atmosphérique par l'intermédiaire de celle des végétaux en équilibre avec l'atmosphère (e.g., Dailliant et al., 2004 ; McGee et al., 2004 ; Isogai et al., 2002 ; Muraki et al., 2001 ; Mc Namara et Mc Cartney, 1998). C'est cette hypothèse qui a permis de reconstruire l'évolution de l'activité spécifique de l'atmosphère à partir de mesures de végétaux pérennes (cernes de bois en particulier). De nombreuses références permettent ainsi d'estimer cette activité spécifique en fonction du temps, dans différentes zones du globe. Un certain nombre de ces valeurs est reporté tableau 1 et représenté figure 1. Dans les publications, les valeurs sont présentées soit sous forme d'activité spécifique, soit de PCM (Pourcentage de carbone moderne) soit de  $\Delta^{14}\text{C}$  ; dans ce cas, les conversions ont été réalisées selon les formulations rappelées en annexe 1, afin de présenter l'ensemble des données sous la forme d'activités spécifiques.



Les données figurées sont relatives à l'hémisphère nord, sauf celles de Hua et al., 2000 (moyenne Tasmanie et Thaïlande).

Figure 1 : Évolution de l'activité spécifique du  $^{14}\text{C}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) dans l'environnement terrestre en fonction du temps.

Dans l'hémisphère nord, l'activité spécifique du  $^{14}\text{C}$  augmente à partir de la valeur de référence  $A_0 = 226 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en 1950, année de référence du carbone « moderne » (Stuiver et Polach, 1977), jusqu'à une valeur maximale proche de  $420 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en 1964. Après cette date, l'activité spécifique du  $^{14}\text{C}$  diminue jusqu'à une valeur de l'ordre de  $240 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en 2003, encore supérieure à sa valeur initiale. Dans l'hémisphère sud, l'évolution est similaire, cependant, le niveau initial (années 1950), comme la valeur maximale, environ  $376 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en 1965, sont légèrement inférieurs à ceux de l'hémisphère nord.



Tableau 1 : Activité spécifique du  $^{14}\text{C}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) dans l'environnement terrestre selon diverses sources bibliographiques

Référence	Mc Gee et al. 2004	Isogai et al., 2002	Mc Namara et Mc Cartney, 1998	Otlet al., 1997	Roussel-Debet et al., 2006	Hua et al., 2000
Origine des valeurs	Valeurs dérivées (cernes d'arbre: <i>Pinus Sylvestris</i> ) Avec correction isotopique Station non influencée par Sellafield	Valeurs dérivées (cernes d'arbre : Orme) Avec correction isotopique Station non influencée par Sellafield	Valeurs dérivées (cernes d'arbre : Mélèze). Sans correction isotopique Station influencée par Sellafield	Valeurs dérivées (végétaux, produits agricoles) Sans correction isotopique Stations diverses, non influencées	Valeurs dérivées (végétaux, produits agricoles) Sans correction isotopique Stations diverses, non influencées	Valeurs dérivées (cernes d'arbre : Pin) Avec correction isotopique Hémisphère sud Basé sur l'estimation : $A_{\text{SN}} = \Delta^{14}\text{C}/(1000 \times A_0 + A_0)$
Région	Irlande	Angleterre	Angleterre	Angleterre	France	Thaïlande Tasmanie
1952						1952 220
1953			1950-1959 232			1953 215
1954	1954-1955 228					1954 217
1955						1955 222
1956	1956 233					1956 230
1957	1958 249					1957 234
1958	1958-1959 271	1958 261				1958 255
1959		1959 292				1959 277
1960	1960 278		1960-1969 361			1960 272
1961	1961 283					1961 277
1962	1962 308	1962 314				1962 292
1963	1963 386	1963 410				1963 348
1964	1964 418					1964 379
1965	1965 407					1965 383
1966	1966-1967 375					1966 373
1967						1967 363
1968	1968-1969 362					1968 351



## 2.2.2 Valeurs retenues pour les évaluations de dose

Les données sélectionnées pour une reconstitution des doses annuelles en France ont été sélectionnées sur les bases suivantes : les données de Mc Namara et Mc Cartney (1998) qui dérivent déjà d'une estimation par différence entre les niveaux observés et ceux imputés théoriquement à Sellafield ont été écartées. De même, ne sont pas considérés les résultats de Hua et al. (2000), relatifs à l'hémisphère sud. Enfin, lorsque 2 valeurs (ou plus) étaient citées pour une même année, la moyenne arithmétique de ces valeurs a été faite.

Les valeurs retenues pour les évaluations de dose sont reportées tableau 2. On utilisera la valeur de référence de 226 Bq.kg<sup>-1</sup> en 1950 comme base pour en déduire l'excédent d'activité imputable aux retombées des tirs. Ceci constitue une approximation, probablement légèrement minorante, en raison de l'augmentation constante du CO<sub>2</sub> de l'atmosphère qui s'appauvrit naturellement en <sup>14</sup>C du fait de l'utilisation des combustibles fossiles (cf. Prentice et al., 2001). En outre, les valeurs retenues intègrent la production de <sup>14</sup>C par les usines du cycle du nucléaire qui, sur les 50 dernières années, représente environ 1 % de l'activité émise par les tirs. En raison de la complexité du cycle du carbone à l'échelle globale, il n'est pas possible d'avoir, de façon simple, une meilleure évaluation de l'excédent d'activité imputable aux retombées des tirs.

Tableau 2 : Valeurs de l'activité spécifique du <sup>14</sup>C (Bq.kg<sup>-1</sup>) retenues pour les évaluations de dose

Année	Total Bq.kg <sup>-1</sup>	Excès <sup>(2)</sup> Bq.kg <sup>-1</sup>	Année	Total Bq.kg <sup>-1</sup>	Excès Bq.kg <sup>-1</sup>	Année	Total Bq.kg <sup>-1</sup>	Excès Bq.kg <sup>-1</sup>
1950	226	0	1970	341	115	1987	275	49
1954	228	2	1971	341	115	1988	269	43
1955	231	5	1972	332	106	1989	266	40
1956	233	7	1973	324	98	1990	261	35
1957	249	23	1974	316	90	1991	260	34
1958	266	40	1975	312	86	1992	259	33
1959	283	57	1976	308	82	1993	258	32
1960	278	52	1977	305	79	1994	257	31
1961	283	57	1978	301	75	1995	256	30
1962	311	85	1979	294	68	1996	255	29
1963	398	172	1980	290	64	1997	254	28
1964	418	192	1981	294	68	1998	252	26
1965	407	181	1982	292	66	1999	251	25
1966	375	149	1983	289	63	2000	248	22
1967	368	142	1984	285	59	2001	249	23
1968	362	136	1985	281	55	2002	247	21
1969	347	121	1986	277	51	2003	242	16

<sup>2</sup> Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».

## 2.3 Voies d'atteinte considérées - méthode de calcul.

Le carbone 14 n'occasionne pas d'irradiation externe (émetteur  $\beta$  pur de faible énergie). En ce qui concerne l'irradiation interne, l'incorporation du carbone dans l'organisme humain est essentiellement liée à l'ingestion (figure 2). On admet pour l'adulte une ingestion de l'ordre de 250 à 300 g.j<sup>-1</sup> de carbone d'origine alimentaire, quasi-entièrement absorbé contre 3 g.j<sup>-1</sup> de carbone inhalé dont seul 1 % est fixé dans l'organisme (CIPR, 1974). En conséquence, les évaluations reviennent à prendre en compte uniquement les voies de transfert liées à la chaîne alimentaire. Une estimation de la dose liée à l'inhalation sera néanmoins effectuée, à titre de comparaison. Étant donnée la période physique du carbone 14, il n'est pas nécessaire de tenir compte de sa décroissance radioactive (il est notamment inutile de prendre en compte un délai de stockage des produits alimentaires). D'autre part, l'élément fils étant stable, l'irradiation par les produits de filiation n'est pas à considérer.

Pour le carbone 14 d'origine atmosphérique, les modèles de calcul de dose prennent en compte la conservation du rapport isotopique depuis l'atmosphère jusque dans l'organisme humain, soit de façon agrégée (ingestion totale du carbone), soit via une évaluation pas - à - pas de l'activité massique des aliments en carbone 14, suivie du cumul des activités ingérées en fonction de la ration alimentaire.

On considérera que l'activité spécifique de l'atmosphère est constante par année calendaire, car nous ne disposons pas de mesures permettant d'utiliser un pas de temps plus resserré. Par ailleurs, l'activité spécifique de l'atmosphère sera considérée comme homogène au niveau européen.

<b>ATMOSPHERE</b>	<i>Photosynthèse</i>			<i>Inhalation</i>
<i>Respiration</i>	<b>VÉGÉTAUX</b>	<i>Ingestion</i>	<i>Résidus végétaux</i>	<i>Ingestion</i>
<i>Respiration</i>		<b>ANIMAUX</b>	<i>Fèces</i>	<i>Ingestion</i>
<i>Respiration</i>			<b>SOL</b>	<i>Ingestion</i>
				<b>INDIVIDU</b>

Cette matrice explicite les **COMPOSANTES** (éléments diagonaux) et les *processus de transfert* du <sup>14</sup>C (éléments hors diagonale) entre compartiments. Certaines interactions sont négligées (notées en gris).

Figure 2 : Matrice globale d'interactions relative au <sup>14</sup>C

### 2.3.1 Équations de calcul de la dose par ingestion

Le type de modèle le plus détaillé fait référence aux quantités de carbone ingérées par l'homme par les différents produits composant son régime alimentaire (e.g., Simmonds et al., 1995 ; Zach et Scheppard, 1992 ; USNRC, 1977). Cette formulation, qui nécessite une évaluation de l'activité en carbone 14 de chaque produit, permet de mieux prendre en compte les particularités concernant la ration alimentaire.

La dose efficace par ingestion s'exprime selon l'équation :

$$D_a = FD_{\text{ing},a} \times \sum_i R_{i,a} \times {}^{14}\text{C}_i \quad (\text{Équation 2})$$

$D_a$	Dose efficace pour l'individu d'âge a (Sv.an <sup>-1</sup> )
$FD_{\text{ing},a}$	Facteur de dose efficace par ingestion du carbone 14 (Sv.Bq <sup>-1</sup> )
$R_{i,a}$	Masse d'aliment i consommée annuellement par l'individu d'âge a (kg.an <sup>-1</sup> )
${}^{14}\text{C}_i$	Activité du carbone 14 par unité de masse de l'aliment i (Bq.kg <sup>-1</sup> )

Les activités massiques des produits végétaux ou animaux sont calculées par :

$${}^{14}\text{C}_i = f_{c,i} \times A_{\text{air}} \quad (\text{Équation 3})$$

${}^{14}\text{C}_i$	Activité massique du produit frais i (Bq.kg <sup>-1</sup> frais)
$f_{c,i}$	Fraction de carbone stable dans le produit frais i (kg C.kg <sup>-1</sup> frais)
$A_{\text{air}}$	Activité spécifique du carbone, supposé sous forme de CO <sub>2</sub> , dans l'atmosphère (Bq.kg <sup>-1</sup> C) $A_{\text{air}} = {}^{14}\text{C}_{\text{air}} / {}^{12}\text{C}_{\text{air}}$

#### Remarque

L'expression globale de la dose efficace par ingestion peut s'écrire (en combinant les 2 équations précédentes) :

$$D_a = A_{\text{air}} \times \left[ FD_{\text{ing},a} \times \sum_i R_{i,a} \times f_{c,i} \right] \quad (\text{Équation 4})$$

Pour une classe d'âge et pour une année fixée, la dose est donc directement proportionnelle à l'activité spécifique de l'atmosphère. Par ailleurs le produit inclus dans la somme est égal à la quantité annuelle de carbone alimentaire ingéré.

### 2.3.2 Valeurs et origine des paramètres

Les facteurs de dose et les paramètres relatifs à la ration alimentaire et à la teneur en carbone des aliments sont reportées aux tableaux 3 à 5. Nous décrivons ci-après leur origine.

#### ❑ Facteurs de dose efficace $FD_{\text{ing},a}$

Ces facteurs sont tirés de la base ECRIN de l'IRSN et proviennent de Euratom (1996). Ils sont relatifs à une durée d'intégration de 70 ans. Compte tenu des classes d'âge considérées pour la ration alimentaire et des valeurs très proches des facteurs de dose pour les catégories « 12 à 17 ans » et « > 17 ans », on affectera le même facteur de dose de  $5,8 \times 10^{-10}$  Sv.Bq<sup>-1</sup> à la catégorie « > 12 ans ».

#### ❑ Ration alimentaire $R_{i,a}$

La ration est directement issue de l'étude de Vray et Renaud (2005), avec les mêmes hypothèses de représentativité des groupes d'aliments et de distribution dans les mêmes classes d'âge. Toutefois, une simplification a été apportée en regroupant les produits frais et conservés d'un même aliment dans une même catégorie, puisque pour le <sup>14</sup>C il est inutile de considérer une décroissance radioactive. Cette ration

est relative aux « poids bruts » des aliments, ce qui, en termes de concentration ne change pas l'activité massique du  $^{14}\text{C}$ .

Par ailleurs, compte-tenu de l'importance de la consommation des catégories « sucre » et « huiles végétales » dans l'incorporation alimentaire du carbone, ces produits ont été ajoutés à la ration présentée par Vray et Renaud (2005). Il est supposé que ces produits sont contaminés en  $^{14}\text{C}$  quelle que soit leur origine (métropolitaine ou non), ce qui se justifie par la dispersion du  $^{14}\text{C}$  à l'échelle du globe. La ration de ces produits est issue du rapport bibliographique de Garnier-Laplace et al. (1994) pour l'adulte (ici considéré comme individu d'âge supérieur à 12 ans) ; pour les tranches d'âge inférieures, la ration adulte a été « ventilée » au prorata de la masse totale d'aliments ingérés, exception faite du nourrisson pour lequel ces deux produits n'ont pas été considérés.

Enfin, la ration ne tient pas compte de l'ingestion de poissons (eaux douces et marines) dont la contamination en  $^{14}\text{C}$  peut être supposée négligeable au regard de celle des produits agricoles.

□ Fraction de carbone des aliments  $f_{c,i}$

Les valeurs proviennent du rapport bibliographique de Garnier-Laplace et al. (1994). Pour que les catégories d'aliments soient « superposables » à celles de la ration alimentaire considérée, on a utilisé la valeur « pommes de terre » pour la catégorie « légumes-racine hors pommes de terre ».

La combinaison de ces deux derniers paramètres permet d'évaluer la masse totale de carbone ingérée par l'individu (tableau 6). Pour l'adulte, l'ingestion journalière totale de carbone est  $251 \text{ g.j}^{-1}$ . Cette valeur est plus faible que les  $300 \text{ g.j}^{-1}$  indiqués par défaut pour l'adulte « standard » (CIPR, 1974), néanmoins, elle correspond correctement à la valeur de  $255 \text{ g.j}^{-1}$  de carbone annoncée par Charles et Jones (2005) lors d'évaluations faites par le modèle PC-CREAM du NRPB au Royaume Uni. En outre, cette valeur correspond bien aux résultats de mesure réalisés sur les plateaux-repas des établissements scolaires du Vésinet<sup>3</sup> : la ration moyenne en carbone mesurée est de  $255 \pm 13 \text{ g.j}^{-1}$ , compte tenu d'une ration journalière de 510 grammes de matière sèche comportant 50,1 % de carbone. Nous conserverons donc la ration en carbone indiquée au tableau 6 ce qui permet, en outre, de présenter des données cohérentes avec le rapport de Vray et Renaud (2005).

Remarque.

À partir des résultats de mesure de  $^{14}\text{C}$  effectuées sur les plateaux-repas des établissements scolaires du Vésinet, l'activité spécifique du  $^{14}\text{C}$  de la ration alimentaire de ces prélèvements peut être évaluée. Le calcul, effectué avec les résultats des mesures réalisées de 2002 à 2005, aboutit à une activité spécifique de  $373 \pm 50 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ C}$ , donc supérieure d'environ 50 % aux valeurs de la littérature pour cette même période (environ  $240 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ C}$ , cf. tableau 1) et proche des valeurs observées dans les années 1965. Une explication pourrait être que les denrées composant la ration des plateaux-repas proviendraient, au moins en partie, d'une zone relativement contaminée en  $^{14}\text{C}$ . Des compléments d'investigations sont donc prévus afin d'expliquer cette anomalie apparente.

---

<sup>3</sup> Station de référence du Laboratoire de Veille Radiologique de l'Environnement (IRSN/DEI/SESURE).

Tableau 3 : Facteurs de dose efficace du  $^{14}\text{C}$  par ingestion.

Tranche d'âge de l'individu	$\text{FD}_{\text{ing,a}}$ (Sv.Bq $^{-1}$ )					
	0 à 1 an	1 à 2 ans	2 à 7 ans	7 à 12 ans	12 à 17 ans	> 17 ans
Facteur de dose efficace	$1,4 \times 10^{-9}$	$1,6 \times 10^{-9}$	$9,9 \times 10^{-10}$	$8,0 \times 10^{-10}$	$5,7 \times 10^{-10}$	$5,8 \times 10^{-10}$

Tableau 4 : Quantités d'aliments ingérées annuellement.

Tranche d'âge de l'individu	$\text{R}_{\text{i,a}}$ (kg frais.an $^{-1}$ )				
	0 à 1 an	1 à 2 ans	2 à 7 ans	7 à 12 ans	> 12 ans (adulte)
Légumes-feuilles		3	26	29	40
Légumes-fruits + fruits		40	73	84	113
Légumes-racine hors pommes de terre		13	13	15	26
Pommes de terre		18	22	33	29
Dérivés céréaliers		9	51	73	73
Lait et dérivés (équivalent lait)	292	146	204	175	146
Viande (équivalent bœuf)		11	51	69	84
Sucre		15	28	31	33
Huile végétale		4	7	7	8

Tableau 5 : Fraction de carbone des aliments.

	$f_{\text{c,i}}$ (kg C.kg $^{-1}$ frais)
Légumes-feuilles	0,050
Autres légumes + fruits	0,050
Légumes-racine hors pommes de terre	0,095
Céréales	0,950
Pommes de terre	0,360
Lait et dérivés	0,067
Viande	0,265
Sucre	0,438
Huile végétale	0,750

Tableau 6 : Masse totale de carbone ingérée annuellement.

	0 à 1 an	1 à 2 ans	2 à 7 ans	7 à 12 ans	> 12 ans
kg.an $^{-1}$	20	31	71	85	92
g.jour $^{-1}$	54	84	195	234	251

La contribution de chacun des produits alimentaires à l'ingestion de carbone (et donc, in fine, à la dose par ingestion) est représentée figure 3. Très logiquement, ce sont les produits les plus riches en carbone et les plus consommés qui contribuent le plus à l'incorporation de carbone. Pour l'adulte, par exemple, l'ensemble sucre + céréales + viande représente 60 % de l'ingestion de carbone.

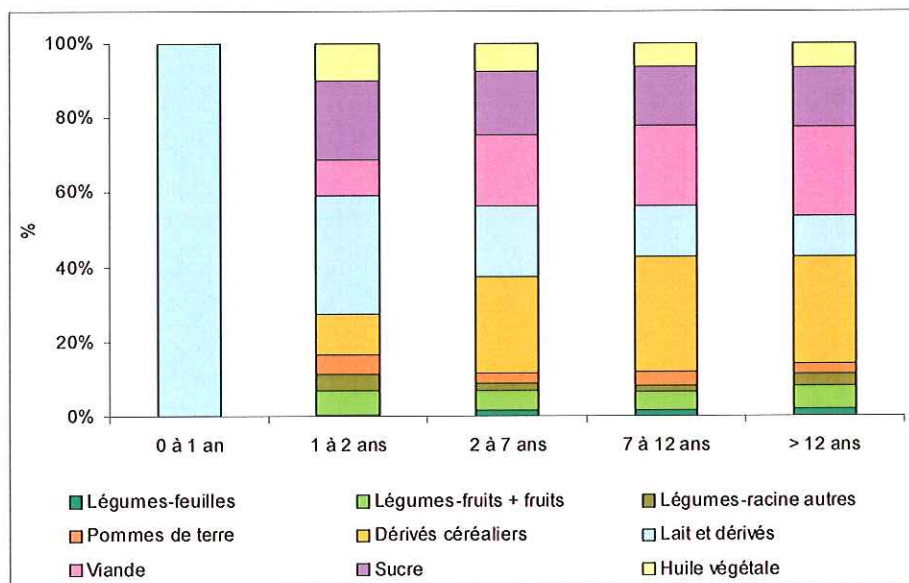


Figure 3 : Proportion de carbone ingéré avec les différents composants de la ration (en % du carbone total ingéré annuellement).

L'application de l'équation 4 permet de calculer le facteur  $FD_{ing,a} \times \sum_i R_{i,a} \times f_{c,i}$  par tranche d'âge (tableau 7).

Il suffit ensuite de multiplier ce facteur par l'activité spécifique annuelle du  $^{14}C$  de l'air (cf. tableau 2, § 2.2.2) pour en déduire la dose efficace annuelle. Ce tableau montre d'ores et déjà que pour une même activité spécifique de l'air, les enfants de 2 à 7 ans et ceux de 7 à 12 ans auront une dose supérieure à celle des autres tranches d'âge, les nourrissons étant les moins exposés.

Tableau 7 : Facteur de conversion  $FD_{ing,a} \times \sum_i R_{i,a} \times f_{c,i}$  ( $Sv.an^{-1}$  par  $Bq.kg^{-1}$ ).

0 à 1 an	1 à 2 ans	2 à 7 ans	7 à 12 ans	> 12 ans
$2,8 \times 10^{-8}$	$5,0 \times 10^{-8}$	$7,0 \times 10^{-8}$	$6,8 \times 10^{-8}$	$5,3 \times 10^{-8}$



### 2.3.3 Formulation simplifiée du calcul de dose par ingestion

À titre de comparaison, nous évaluons également les doses par ingestion pour l'adulte selon la formulation simplifiée présentée par l'AIEA (2001) :

$$D_a = g_{ing} \times A \times f \quad (\text{Équation 5})$$

$D_a$	Dose efficace pour l'individu d'âge a (Sv.an <sup>-1</sup> )
$g_{ing}$	Facteur de dose efficace « agrégé » <sup>4</sup> (Sv.an <sup>-1</sup> par Bq.g <sup>-1</sup> ) pour l'adulte, égal à $5,6 \times 10^{-5}$
$A$	Activité spécifique de l'alimentation (Bq.g <sup>-1</sup> ), prise ici égale à la valeur moyenne de l'activité spécifique du carbone dans l'atmosphère, à la conversion d'unité près, soit $1 \times 10^{-3} \times A_{air}$
$f$	fraction de carbone alimentaire provenant de la production locale (-), ici pris égal à 1

### 2.3.4 Estimation des doses par inhalation

Cette évaluation est faite uniquement pour l'adulte, dans le but de donner l'ordre de grandeur de la dose par inhalation, supposée a priori négligeable par rapport à l'ingestion.

#### 2.3.4.1 Évaluation de l'activité volumique de l'air

L'activité volumique en <sup>14</sup>C de l'atmosphère (<sup>5</sup>) peut être estimée par :

$$C_{air} = f_{air} \times C_{CO_2} \times A_{air} \quad (\text{Équation 6})$$

$C_{air}$	Activité volumique en <sup>14</sup> C de l'atmosphère (Bq.m <sup>-3</sup> air)
$f_{air}$	Proportion (volume/volume) du CO <sub>2</sub> dans l'air (m <sup>3</sup> CO <sub>2</sub> .m <sup>-3</sup> air)
$C_{CO_2}$	Concentration (masse/volume) du carbone dans le CO <sub>2</sub> (kg C.m <sup>-3</sup> CO <sub>2</sub> )
$A_{air}$	Activité spécifique du carbone dans l'atmosphère (Bq.kg <sup>-1</sup> C)

Les valeurs de  $f_{air}$  sont mesurées en permanence à l'observatoire international de référence de Mauna Loa (Keeling et Whorf, 2001), cf. figure 4. Depuis les années 1950, la proportion volumique du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère (m<sup>3</sup> CO<sub>2</sub> .m<sup>-3</sup> air) est passée de  $315 \times 10^{-6}$  à plus de  $375 \times 10^{-6}$  en 2003.

La concentration du carbone dans le CO<sub>2</sub> (kg C.m<sup>-3</sup> CO<sub>2</sub>) est estimée à partir de la masse molaire du carbone (12 g.mol<sup>-1</sup>) et du volume molaire des gaz parfaits à la pression atmosphérique (22,4 l.mol<sup>-1</sup>), soit environ 0,537 kg C.m<sup>-3</sup> CO<sub>2</sub>. En 2003, la concentration du carbone dans l'air serait ainsi de l'ordre de 0,2 g C.m<sup>-3</sup> air.

L'activité spécifique retenue est celle qui a été reportée au tableau 2, § 2.2.2.

<sup>4</sup> Cette formulation sous entend, en réalité, une ingestion de carbone d'environ 265 g.j<sup>-1</sup> (estimée par  $g_{ing}/FD_{ing}$ ).

<sup>5</sup> Contrairement à l'usage, par souci de clarté, nous détaillons ici les unités, en précisant « air », « CO<sub>2</sub> »... dans leur intitulé.

En appliquant l'équation 6 et les paramètres décrits, on obtient une estimation de l'évolution de l'activité moyenne globale de l'air en  $^{14}\text{C}$ , représentée figure 5. Celle-ci a augmenté à partir de sa valeur initiale, i.e.,  $0,07 \text{ Bq.m}^{-3}$  en 1950 jusqu'à un maximum de  $0,13 \text{ Bq.m}^{-3}$  en 1964 pour redescendre actuellement à une valeur de l'ordre de  $0,09 \text{ Bq.m}^{-3}$ . L'excédent de  $^{14}\text{C}$  attribuable aux tirs atmosphériques et autres rejets anthropiques a été au maximum de  $0,06 \text{ Bq.m}^{-3}$  en 1964.

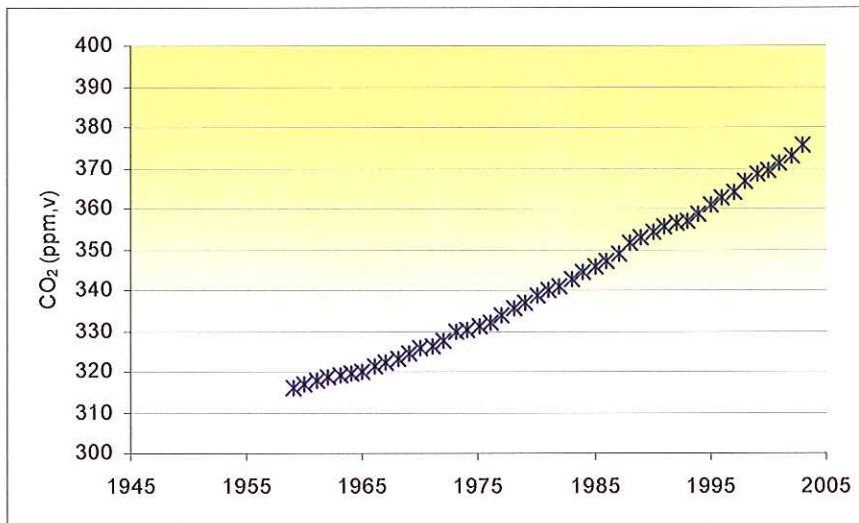
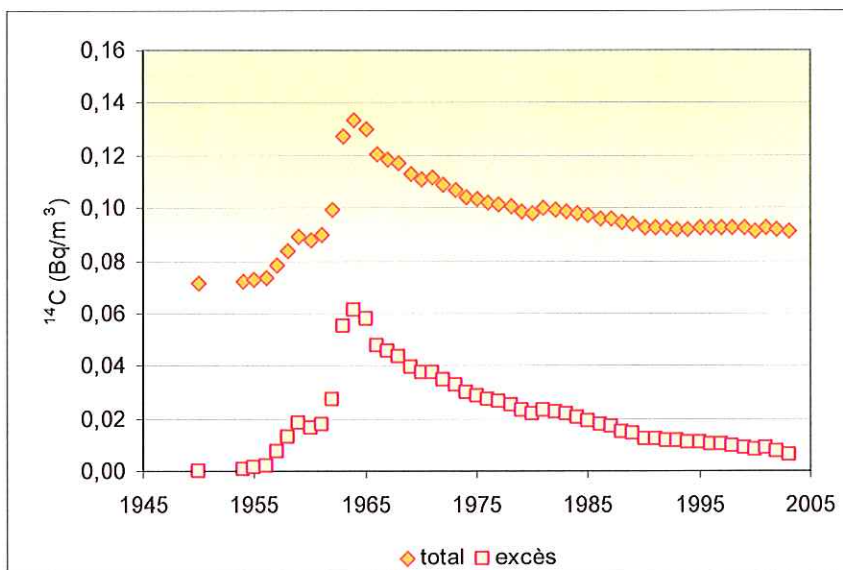


Figure 4 : Évolution de la concentration du  $\text{CO}_2$  de l'atmosphère (Keeling et Whorf, 2001).



Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».  
 Figure 5 : Estimation de l'évolution de l'activité volumique de l'atmosphère en  $^{14}\text{C}$ .

### 2.3.4.2 Dose par inhalation, pour l'adulte

La dose efficace par inhalation s'exprime selon l'équation :

$$D_{inh} = FD_{inh} \times C_{air} \times T_{inh} \quad (\text{Équation 7})$$

$D_{inh}$	Dose efficace par inhalation (Sv.an <sup>-1</sup> )
$FD_{inh}$	Facteur de dose efficace par inhalation du carbone 14 sous forme de CO <sub>2</sub> (Sv.Bq <sup>-1</sup> ) soit $6,2 \times 10^{-12}$ selon les données de la base ECRIN, pour l'adulte et pour la forme CO <sub>2</sub>
$C_{air}$	Activité volumique en <sup>14</sup> C de l'atmosphère (Bq.m <sup>-3</sup> air), calculée précédemment
$T_{inh}$	Quantité moyenne annuelle inhalée par l'adulte (m <sup>3</sup> .an <sup>-1</sup> ), soit, 8 400 m <sup>3</sup> .an <sup>-1</sup> (AIEA, 2001)

## 3 Résultats et discussion

### 3.1 Dose efficace annuelle

La figure 6 représente la dose annuelle par tranche d'âge liée à l'ingestion du <sup>14</sup>C, calculée selon les équations présentées au § 2.3.1, en distinguant la dose totale et l'excédent de dose imputable aux retombées des tirs. Un résumé des valeurs est présenté tableau 8.

Tableau 8 : Résumé des valeurs de dose efficace annuelle par ingestion (μSv.an<sup>-1</sup>) par tranches d'âge.

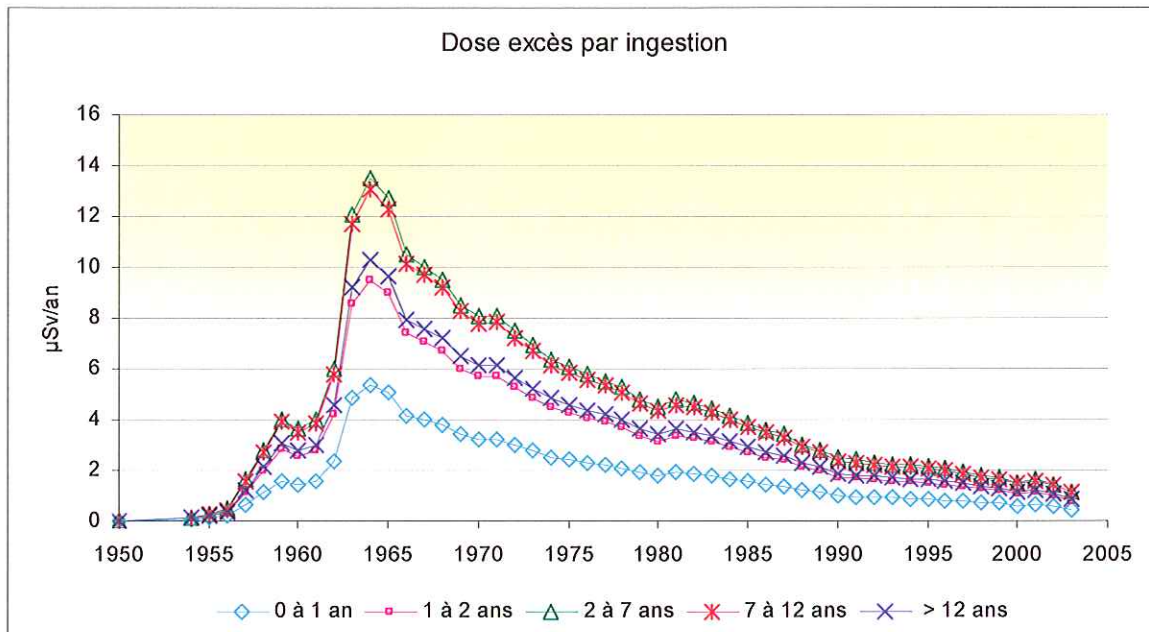
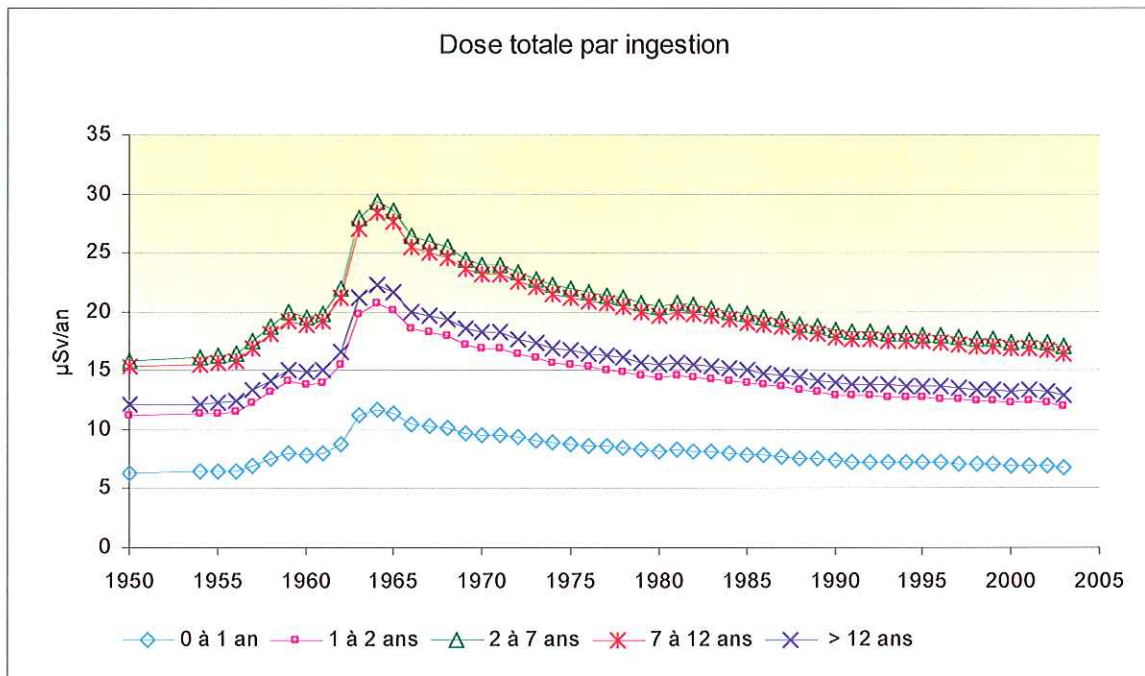
Les données résultent du mode de calcul présenté au § 2.3.1, sauf la dernière colonne qui présente les doses obtenues pour l'adulte avec la méthode agrégée décrite au § 2.3.3.

		0 à 1 an	1 à 2 ans	2 à 7 ans	7 à 12 ans	> 12 ans	Adulte (AIEA, 2001)
	Bruit de fond (1950)	6,3	11,2	15,9	15,4	12,1	12,7
Total	Maximum (1964)	11,7	20,7	29,4	28,4	22,3	23,4
	Actuel (2003)	6,8	12,0	17,0	16,5	12,9	13,6
Excès	Maximum (1964)	5,384	9,53	13,50	13,06	10,25	10,76
	Actuel (2003)	0,46	0,82	1,16	1,12	0,88	0,92

Pour l'adulte, la dose efficace est passée depuis les années 1950 de 12,1 μSv.an<sup>-1</sup> à un maximum de l'ordre de 22,3 μSv.an<sup>-1</sup> en 1964 pour redescendre ensuite à un niveau de 12,9 μSv.an<sup>-1</sup> très légèrement supérieur à sa valeur initiale. L'excédent de dose a atteint une dizaine de μSv.an<sup>-1</sup>.

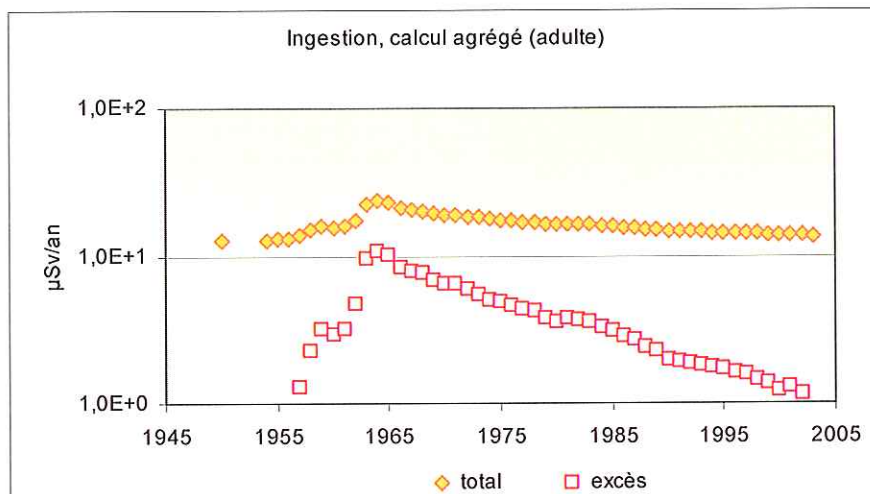
Les valeurs obtenues sont plus élevées pour l'enfant de 2 à 7 ans et de 7 à 12 ans que pour l'adulte, les nourrissons étant environ 2 fois moins exposés que les adultes, comme cela avait été signalé (cf. § 2.3.2).

Par ailleurs la comparaison, pour l'adulte, des doses ainsi calculées avec les valeurs obtenues selon la méthode simplifiée de l'AIEA (2001) présentée au § 2.3.3 montre que cette dernière méthode fournit des résultats remarquablement concordants (supérieurs de 5 %) avec ceux obtenus par la méthode détaillée (cf. figure 7).



Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».

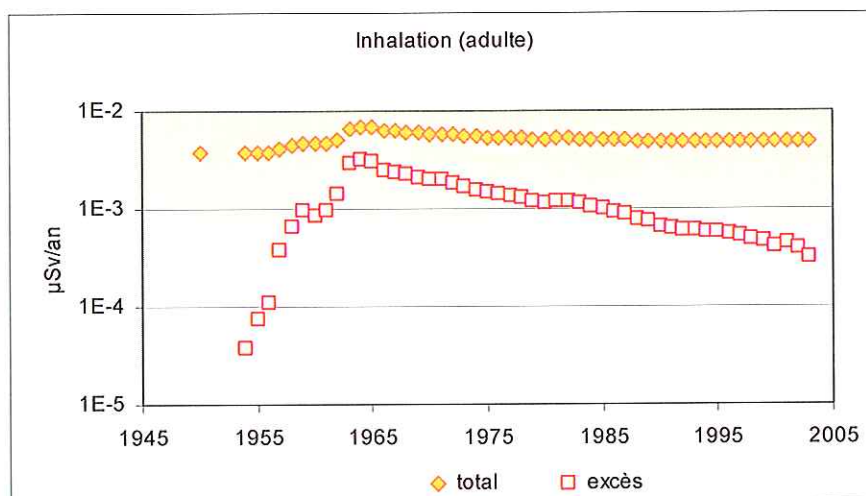
Figure 6 : Dose annuelle liée à l'ingestion de carbone 14, par tranches d'âge.



Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».

Figure 7 : Dose efficace par ingestion, pour l'adulte calculées selon la méthode simplifiée de l'AIEA (2001).

D'autre part, l'estimation des doses par inhalation réalisée selon la méthode présentée au § 2.3.4 confirme que cette voie d'atteinte est négligeable comparativement à l'ingestion, avec une dose totale inférieure à  $0,01 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$  en 1964 et de l'ordre de  $0,005 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$  actuellement, soit 4 pour dix mille fois la dose par ingestion.



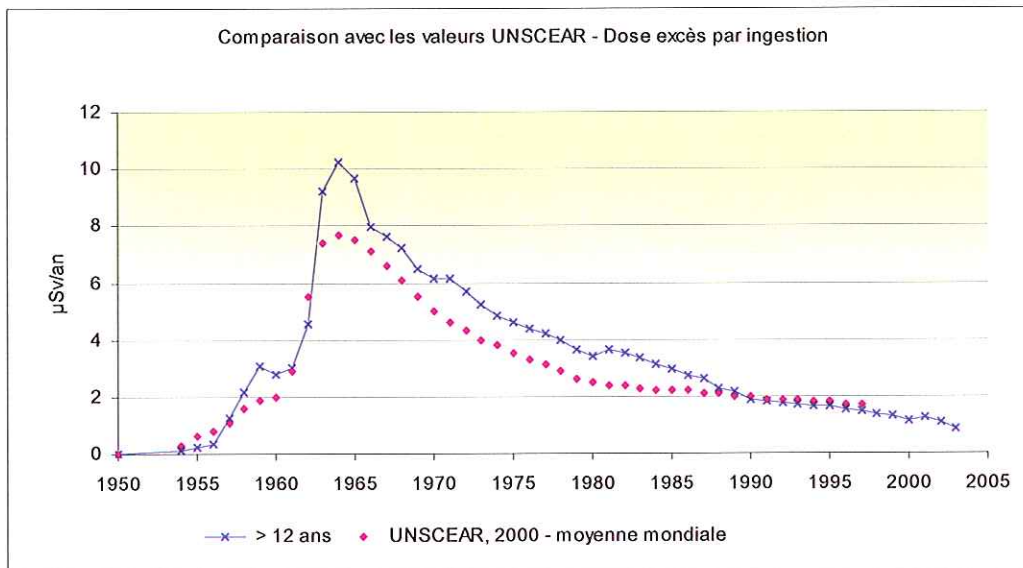
Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».

Figure 8 : Dose efficace par inhalation, pour l'adulte.

### 3.2 Comparaison avec les données de l'UNSCEAR

En ce qui concerne les valeurs de dose pour l'adulte imputables au bruit de fond en  $^{14}\text{C}$ , les résultats de la présente étude :  $12,1 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$ , et ceux présentés par l'UNSCEAR (2000) :  $12 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$ , sont remarquablement proches et n'appellent aucun commentaire particulier.

En ce qui concerne l'excédent de dose liée aux tirs nucléaires, la comparaison des résultats obtenus dans la présente étude avec les valeurs estimées par l'UNSCEAR (2000) est présentée figure 9 pour l'adulte. Cette comparaison met en évidence une différence qui atteint  $2,6 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$  au maximum en 1964 (soit 25 %), les doses évaluées par l'UNSCEAR étant plus faibles.



Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».

Figure 9 : Comparaison de la dose efficace par ingestion pour l'adulte estimée dans la présente étude avec les résultats de l'UNSCEAR (2000).

Les données de l'UNSCEAR sont des valeurs moyennes sur l'ensemble du globe (essentiellement destinées à une évaluation de dose collective). La modélisation comporte une succession de calculs des activités spécifiques du  $^{14}\text{C}$  dans l'atmosphère puis dans les compartiments de la biosphère et des océans, à partir des estimations des rejets imputables aux tirs. Les paramètres du modèle sont ajustés pour être cohérents avec les mesures d'activité spécifique disponibles. Outre l'incertitude liée au modèle de l'UNSCEAR (18 compartiments sont pris en compte), la différence entre les résultats de l'UNSCEAR et ceux de la présente étude peut s'expliquer, en partie, par les valeurs de l'activité spécifique prises en compte, puisque dans la présente étude l'activité spécifique considérée est relative à la zone européenne. Or, l'activité spécifique du carbone est supérieure dans l'hémisphère nord par rapport à l'hémisphère sud (cf. figure 1 et tableau 1) : en 1964 par exemple, cette différence est de l'ordre de  $60 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . Cette différence correspond à un écart<sup>6</sup> de l'ordre de  $3 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$  sur la dose par ingestion pour l'adulte. Par ailleurs, la présente étude intègre l'ensemble des rejets de carbone 14 (tirs atmosphériques et autres rejets anthropiques) alors que l'UNSCEAR prend en compte uniquement les tirs sous forme d'un terme source, ce qui va également dans le sens d'un écart entre les résultats.

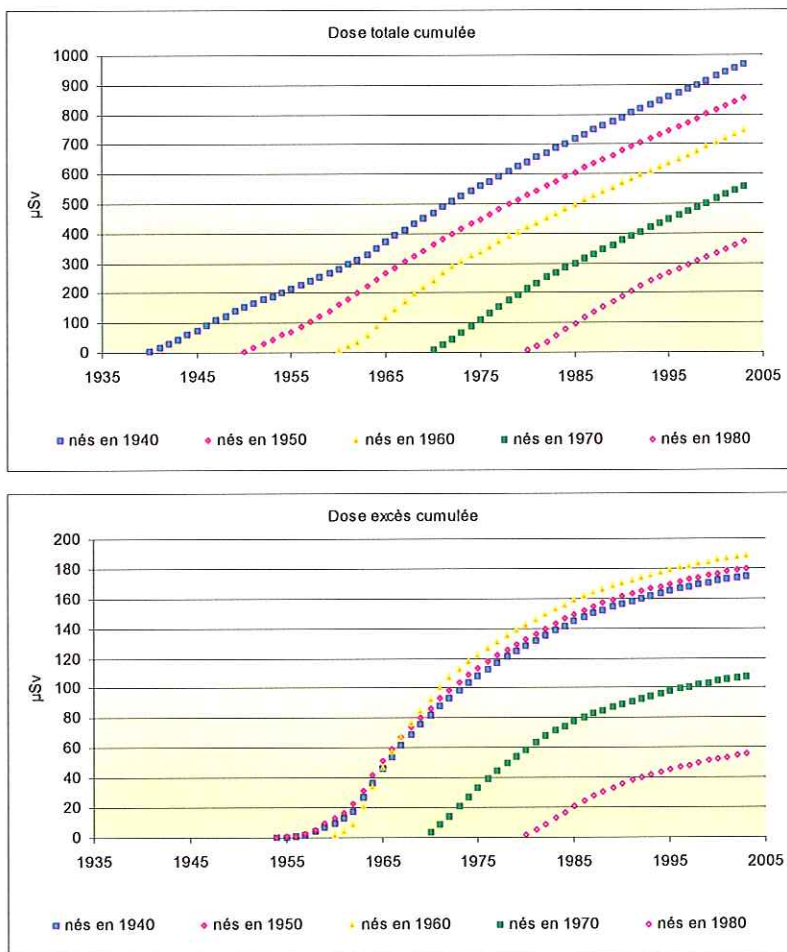
En définitive, si l'on compare une modélisation des « transferts » d'activité spécifique du carbone dans tous les compartiments et in fine dans les végétaux et les productions animales à la mesure des végétaux eux-mêmes, cette dernière est probablement plus juste puisqu'elle donne directement l'activité spécifique de la biosphère. Ceci, à la condition de supposer une excellente représentativité des cernes d'arbres vis à vis de l'activité spécifique du carbone, ce qui est admis par la communauté scientifique.

<sup>6</sup> Calculé avec l'équation 4.

Par ailleurs, la cohérence des valeurs relatives au bruit de fond montre que pour une source « connue » et parfaitement en équilibre au niveau mondial (i.e., production naturelle du  $^{14}\text{C}$ ), les résultats des estimations sont similaires, ce qui tend à conforter la présente étude (notamment en termes de ration alimentaire considérée). Nous considérerons donc que l'excès de  $^{14}\text{C}$  imputable aux tirs (et autres rejets anthropiques) aboutit, pour l'adulte, à une dose efficace d'au maximum de 10  $\mu\text{Sv}$  en 1964 et que cette dose a décliné d'un facteur 10 en 2004. Pour ce qui concerne les tranches d'âge inférieures à 12 ans, l'incertitude est essentiellement liée à celle relative la ration alimentaire ; les valeurs du tableau 8, pour ces tranches d'âge, sont donc à considérer avec précaution.

### 3.3 Dose efficace cumulée

Pour estimer la dose efficace cumulée, nous avons considéré des cohortes de générations nées tous les 10 ans de 1940 à 1980 et additionné les doses annuelles, compte-tenu de l'âge atteint chaque année par chaque cohorte. La figure 10 présente respectivement la dose totale (incluant le bruit de fond) et l'excédent de dose en fonction de l'année et de la génération considérée.



Le terme « excès » est employé au sens de « excédent imputable aux tirs et autres rejets anthropiques ».

Figure 10 : Dose cumulée liée à l'ingestion de carbone 14, par générations.

En termes de dose totale, la génération 1940 a reçu la dose la plus élevée : près de 1 mSv après une soixantaine d'années, ce qui reste faible eu égard à la dose « naturelle » totale (de l'ordre du millisievert par an). Les générations suivantes ont reçu des doses plus faibles.

L'excès de dose imputable aux tirs et autres rejets anthropiques est maximal et quasi identique en 2003 pour les générations nées en 1940, 1950 et 1960 : 180  $\mu\text{Sv}$  en 2003. Les générations plus jeunes se situent loin derrière avec des excès de dose de l'ordre de 50 à 100  $\mu\text{Sv}$  au total.

## 4 Conclusion

En complément du calcul des conséquences dosimétriques en France, entre 1961 et 1978 des retombées de produits de fission et d'activation liées aux essais aériens d'armes (Vray et Renaud, 2005), une évaluation similaire est faite pour le carbone 14, pour l'exposition par ingestion. Les calculs sont basés sur l'hypothèse consensuelle de l'équilibre isotopique du radiocarbone et du carbone stable, composant majeur de la matière organique. L'activité spécifique du carbone 14 dans la biosphère, nécessaire aux calculs, est estimée à partir de mesures faites en Europe disponibles dans la littérature scientifique récente ; la ration alimentaire est directement dérivée de celle établie par Vray et Renaud (2005).

Les résultats comparables (i.e., doses efficaces pour l'adulte) de la présente étude et publiés par ailleurs sont cohérents. En termes de méthodologie, ils montrent qu'une modélisation simple est appropriée à l'échelle locale, en dépit du comportement très complexe du carbone dans l'environnement : le fait d'estimer l'activité spécifique du carbone ingéré en la supposant égale à celle mesurée dans les végétaux (présente étude) permet de court-circuiter les sources d'incertitude liées à des modèles compartimentaux, dévolus préférentiellement à une détermination à l'échelle du globe (modèle UNSCEAR, 2000). Un modèle totalement agrégé (modèle AIEA, 2001), qui ne détaille même pas la ration alimentaire mais envisage une consommation globale de carbone (sous-jacente à l'utilisation d'un facteur de dose agrégé), se révèle tout aussi adéquat.

Malgré la persistance prolongée du  $^{14}\text{C}$  dans l'environnement (pas de décroissance physique significative et modalités de « transfert » très particulières), la dose efficace maximale imputable au  $^{14}\text{C}$  des rejets anthropiques est relativement modeste : 10  $\mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$  en 1964, comparés à 270  $\mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$  en 1961 pour le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{90}\text{Sr}$  des tirs (Vray et Renaud, 2005). L'excès de  $^{14}\text{C}$  dans les années 1960, dû en quasi-totalité aux tirs, a presque doublé l'exposition liée au  $^{14}\text{C}$  d'origine naturelle. L'exposition au  $^{14}\text{C}$  est maintenant revenue à un niveau faiblement supérieur à sa valeur initiale en 1950, de l'ordre de la dizaine de microsievverts par an.



## 5 Bibliographie

- AIEA (1982). *Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases*. Agence Internationale de l'Énergie Atomique, Safety series n° 57.
- AIEA (1985). *The radiological impact of radionuclides dispersed on a regional and global scale : methods for assessment and their application*. Agence Internationale de l'Énergie Atomique, Technical report series n° 250.
- AIEA (2001). *Generic Models for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment*. Agence Internationale de l'Énergie Atomique, Safety series n° 19.
- Charles K et Jones S (2005). Disaggregation and valuation of collective dose and global circulation dose. *Journal of Radiological Protection* 25(277-288).
- CIPR (1974). *Report of the task group on Reference Man*. International Commission on Radiological Protection, n° 23.
- Daillant O, Kirchner G, Pigree G et Porstendorfer J (2004). Lichens as indicators of tritium and radiocarbon contamination. *Science of The Total Environment* 323(1-3): 253-262.
- Ehleringer JR, Helliker BR et Cerling TE (1997). C4 photosynthesis, atmospheric CO<sub>2</sub> and climate. *Oecologia*: 285-299.
- Euratom (1996). Directive 96/29/Euratom du Conseil du 13 mai 1996, fixant les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants. *Journal officiel des Communautés européennes*, 29 juin 1996.
- Gao Q, Zhang X, Huang Y et Xu H (2004). A comparative analysis of four models of photosynthesis for 11 plant species in the Loess Plateau. *Agricultural and Forest Meteorology* 126(3-4): 203-222.
- Garnier-Laplace J, Roussel-Debet S et Calmon P (1994). *Modélisation des transferts du carbone 14 émis par les réacteurs à eau pressurisée en fonctionnement normal, dans l'environnement proche du site, dans les milieux aquatique d'eau douce et terrestre*. Rapport IPSN/SERE 98-07.
- Hua Q, Barbetti M, Jacobsen G.E, U Z et Lawson E (2000). Bomb radiocarbon in annual tree rings from Thailand and Australia. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172(359-365).
- Isogai K, Cook GT et Anderson R (2002). Reconstructing the history of <sup>14</sup>C discharges from Sellafield: Part 1- atmospheric discharges. *Journal of Environmental Radioactivity* 59(2): 207-222.
- Keeling CD et Whorf TP (2001). *Atmospheric Carbon Dioxide Record from Mauna*. In Trends Online: a Compendium of Data on Global Change. Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, at <http://cdiac.esd.ornl.gov>. Scripps Institution of Oceanography (SIO) University of California, La Jolla, California, USA.
- Le Dizès S (2004). *Modélisation du transfert de Carbone 14 dans l'environnement. Implémentation au formalisme SYMBOSE*. Rapport IRSN/DEI/SECRE/2004-029.
- Mc Namara N et McCartney M (1998). A New Estimate of Atmospheric <sup>14</sup>C Discharges from Sellafield. *Journal of Environmental Radioactivity* 41(1): 1-10.
- McGee EJ, Gallagher D, Mitchell PI, Baillie M, Brown D et Keogh SM (2004). Recent chronologies for tree rings and terrestrial archives using <sup>14</sup>C bomb fallout history. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 68(11): 2509-2516.
- Muraki Y, Masuda K, Arslanov KA, Toyozumi H, Kato M, Naruse Y, Murata T et Nishiyama T (2001). Measurement of radiocarbon content in leaves from some Japanese sites. *Radiocarbon* 43(2): 695-701.
- NCRP (1996). *Screening models for releases of radionuclides to atmosphere, surface water and ground*. National Council on Radiation Protection and Measurements. NCRP report 123.

OMS (1987). *Critères d'hygiène de l'environnement. Quelques radionucléides. Tritium, carbone 14, krypton 85, strontium 90, iode, césium 137, radon, plutonium*. Organisation Mondiale de la Santé, Genève.

Otlet RL, Walker AJ, Fulker MJ et Collins C (1997). Background carbon-14 levels in UK foodstuffs, 1981-1995, based upon a 1992 survey. *Journal of Environmental radioactivity* 34(1): 91-101.

Prentice I, Farquhar GD, Fasham MJR, Goulden ML, Heimann M, Jaramillo VJ, Khashgi HS, Quéré C, Le Scholes RJ et Wallace DWR (2001). *The Carbon Cycle and Atmospheric Carbon Dioxide*, In : IPCC 2001. *Climate Change 2001 : The Scientific Basis*. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University press, NY, USA, 881 p., p.191-199.

Redondo R et Yelamos JG (2005). Determination of CO<sub>2</sub> origin (natural or industrial) in sparkling bottled waters by <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C isotope ratio analysis. *Food Chemistry* In Press, Corrected Proof.

Roussel-Debet S, Gontier G, Siclet F et Fournier M (2006). Distribution of Carbon 14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. *Journal of Environmental Radioactivity* SOUS PRESSE: 1-14.

Sheppard SC, Amiro BD, Sheppard MI, Stephenson M, Zach R et Bird GA (1994). Carbon-14 in the biosphere: Modeling and porting research for the Canadian Nuclear Fuel Waste Management program. *Waste Management* 14(5): 445-456.

Simmonds JR, Lawson G et Mayall A (1995). *Methodology for assessing the radiological consequences of routine releases of radionuclides to the environment*. National Radiological Protection Board, Institut de Protection et de Sureté Nucléaire, Centro de Investigaciones Energeticas Spain, Consejo de Seguridad Nuclear Spain. CCE contract 91-ET-021. Report EUR 15760.

Stuiver M et Polach HA (1977). Reporting of <sup>14</sup>C data. *Radiocarbon* 19(3): 355-363.

UNSCEAR (2000). *Report to the General Assembly, Sources and Effects of Ionizing Radiation*. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.

US-NRC (1977). *Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR part 50, appendix 1*. United States Nuclear Regulatory Commission. Regulatory guide 1-109 revision 1.

Vray F et Renaud P (2005). *Conséquences dosimétriques des essais aériens d'armes nucléaires en France métropolitaine. Période 1961-1978*. Rapport DEI/SESURE n°2005-17.

Waller S et Mewis J (1979). Occurrence of C3 and C4 photosynthetic pathways in North American grasses. *Journal of Range management* 32(1): 12-28.

Wang WW, B; Zhang, SZ; Shan, XQ et Hsieh Y (2002). Uncertainties and novel prospects in the study of the soil carbon dynamics. *Chemosphere* 49: 791-804.

Zach R et Sheppard S (1992). *The food chain and dose sub-model CALDOS for the assessment of Canada's fuel waste management concept*. Rapport Atomic Energy Canada Limited, AECL 10165.

## 6 Annexe

### 6.1 Fractionnement isotopique

Lors de la photosynthèse, il se produit une discrimination isotopique : les rapports  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  et  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  sont plus faibles dans les tissus végétaux que dans le  $\text{CO}_2$  atmosphérique (dont le  $\delta^{13}\text{C}$  est voisin de  $-8\text{‰}$ ).

À l'équilibre le fractionnement sur le  $^{14}\text{C}$  est presque égal à deux fois le fractionnement sur le  $^{13}\text{C}$ .

Conventionnellement, cette discrimination est exprimée par  $\delta^{13}\text{C}$  (‰) qui représente le rapport isotopique  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  l'échantillon par rapport à la référence absolue conventionnelle PDB (Bélemnite de la formation PeeDee, Crétacé, Caroline du Sud, USA) dont le  $\delta^{13}\text{C}$  est égal à 0 par définition.

$$\text{Ainsi, } \delta^{13}\text{C} = \frac{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{échantillon}} - ^{13}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{référence}}}{^{13}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{référence}}} \times 1000.$$

Ce fractionnement dépend des espèces selon leur cycle photosynthétique dominant (e.g., Waller et Mewis, 1979; Ehleringer et al., 1997; Wang et Hsieh 2002; Gao et al., 2004 ; Redondo et Yelamos, 2005).

Pour la majorité des végétaux i.e., arbres et la plupart des plantes spontanées des zones tempérées ou froides, le fractionnement isotopique est maximal. Ces végétaux sont dits « C3 » car, lors de la photosynthèse, l'assimilation du  $\text{CO}_2$  passe par la formation de composés possédant 3 atomes de carbone. Cette phase est catalysée par une enzyme, la Rubisco (ribulose biphosphate carboxylase oxygénase) qui représente 50 % de l'ensemble des protéines des feuilles photosynthétiquement actives et qui est la protéine la plus abondante au monde. Les végétaux C3 sont moyennement efficaces en ce qui concerne la fixation du  $\text{CO}_2$  (environ 8 g de C fixé par jour et  $\text{m}^2$  de feuille) et ils ont normalement un  $\delta^{13}\text{C}$  qui varie de  $-20$  à  $-35\text{‰}$  avec une moyenne de  $-27\text{‰}$ .

Les plantes les moins abondantes sont dites « C4 » ; elles forment, au cours de la photosynthèse, une molécule à 4 atomes de carbone (réaction catalysée par la PEP : phosphophénol pyruvate carboxylase); ce sont pour l'essentiel, des graminées tropicales, certaines halophytes – plantes adaptées aux sols salés – ainsi que le maïs et le sorgho. Elles sont très efficaces pour la fixation du  $\text{CO}_2$  (environ 19 g de C fixé par jour et par  $\text{m}^2$  de feuille); leur  $\delta^{13}\text{C}$  est en moyenne de  $-13\text{‰}$  et varie de  $-9$  à  $-17\text{‰}$  (Wang et Hsieh, 2002; Redondo et Yelamos, 2005). Quelques espèces (e.g. cactus) qui utilisent les cycles photosynthétiques C3 et C4 ont un  $\delta^{13}\text{C}$  intermédiaire.

## 6.2 Unités associées

Pour le  $^{14}\text{C}$ , il est tenu compte de ce fractionnement par l'utilisation du DELTA  $\Delta^{14}\text{C}$  (‰), qui représente l'enrichissement ( $\Delta^{14}\text{C} > 0$ ) ou la diminution ( $\Delta^{14}\text{C} < 0$ ) de l'activité spécifique du  $^{14}\text{C}$ , normalisée par rapport à celle du carbone moderne de référence, après correction de la discrimination isotopique  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ , elle-même déduite de la mesure du  $\delta^{13}\text{C}$  (Stuiver et Polach, 1977) :

$$\Delta^{14}\text{C} = \left\{ \frac{A_{\text{SN}} \cdot e^{-\lambda(t-t_0)}}{A_0} - 1 \right\} \times 1000 \text{ avec } A_{\text{SN}} = A \left\{ 1 - \frac{2 \cdot (\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}} + 25)}{1000} \right\}$$

$\Delta^{14}\text{C}$ (‰)	enrichissement ou diminution de l'activité spécifique du $^{14}\text{C}$ de l'échantillon, normalisée par rapport au carbone moderne de référence et corrigée (s'il y a lieu) pour la décroissance radioactive ;
$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	activité spécifique du $^{13}\text{C}$ de l'échantillon par rapport à la référence absolue PDB ;
$A_{\text{SN}}$ (Bq.kg $^{-1}$ C)	activité spécifique du $^{14}\text{C}$ de l'échantillon, normalisée par son $\delta^{13}\text{C}$ ;
$A_0$ (Bq.kg $^{-1}$ C)	activité spécifique de référence du carbone moderne, $A_0 = 226$ Bq.kg $^{-1}$ C ;
$A$ (Bq.kg $^{-1}$ C)	activité spécifique du $^{14}\text{C}$ de l'échantillon non corrigée ;
$\lambda$ (an $^{-1}$ )	constante de décroissance radioactive, $\lambda = \text{Ln}2/5568$ , 5 568 ans étant la période radioactive conventionnelle du $^{14}\text{C}$ ;
$t$	année du prélèvement ;
$t_0$	année de référence, $t_0 = 1950$ .

Dans cette formulation, la valeur 2 traduit le fait que la discrimination du  $^{14}\text{C}$  par rapport à  $^{12}\text{C}$  est environ le double de la discrimination  $^{13}\text{C}$  par rapport à  $^{12}\text{C}$ . Par convention, la valeur 25 a été choisie de façon que  $\Delta^{14}\text{C} = \delta^{14}\text{C}$  lorsque  $\delta^{13}\text{C} = -25$  ‰ (les laboratoires utilisant comme standard  $^{14}\text{C}$ , une référence acide oxalique dont le  $\delta^{13}\text{C}$  est ramené à  $-25$  ‰). L'exponentielle n'est utile qu'en datation, en raison de la décroissance très lente du  $^{14}\text{C}$ .

Une autre expression est fréquemment utilisée : PMC (Percent of Modern Carbon)  $\text{PMC} = A_{\text{SN}}/100$  (%).

Ces expressions servent en datation, en particulier en dendrochronologie ; une application dérivée est l'estimation de la contamination de l'environnement en fonction du temps par l'analyse du carbone 14 des cernes d'arbres. La prise en compte du fractionnement dans ce cas garantit un suivi plus fin des données acquises.