



Proposition de thèse 2026

Dynamique et spéciation du ^{14}C dans les milieux aquatiques en aval des centres nucléaires de production d'électricité en bord de rivière



Thématiques : environnement, radioécologie, biochimie

Mots clés : carbone 14, milieu aquatique dulçaquicole, mesure, modélisation

Contexte

Le ^{14}C est un RN à vie longue (période radioactive : 5730 ans), rejeté à la fois dans le milieu atmosphérique et dans les milieux aquatiques par les Centres Nucléaires de Production d'Electricité (CNPE), dans le strict respect de la réglementation. Avec le tritium (^3H), il est l'un des deux principaux RNs rejetés dans les cours d'eau par les CNPE en fonctionnement normal et il contribue majoritairement à la dose annuelle reçue par la population locale, essentiellement par ingestion de poissons marqués au ^{14}C (Siclet et al., 2002).

Le ^{14}C présent dans l'environnement a deux origines, l'une naturelle et l'autre anthropogénique. Le ^{14}C d'origine naturelle est produit par les réactions des neutrons cosmiques sur les atomes d'azote de la haute atmosphère (activation neutronique). Le ^{14}C d'origine anthropogénique est lié aux essais nucléaires atmosphériques (années 1950 à 1980) et aux rejets d'effluents radioactifs des installations nucléaires (Eyrolle-Boyer et al., 2015 ; Castrillejo et al., 2020 ; Rout et al., 2024). Aujourd'hui, il existe de nombreuses études relatives au comportement du carbone stable dans les écosystèmes terrestres, marins ou aquatiques d'eaux douces. Le comportement du carbone stable est principalement étudié sous l'angle des échanges de carbone entre l'atmosphère et les continents ou océans dans le contexte du réchauffement climatique, lié à la production des gaz à effet de serre (Regnier et al., 2022 ; Crisp et al., 2022 ; etc.). La dynamique du flux de carbone au sein des biomasses est abordée notamment via la quantification de la composition isotopique du carbone et de l'azote, dont la richesse en $\delta^{13}\text{C}$ et $\delta^{15}\text{N}$ constitue un marqueur du niveau trophique (Post, 2002 ; Vander Zanden et al., 1999). Bien que ces travaux délivrent de précieuses informations quant au cycle global du carbone, et à la structure et au fonctionnement des réseaux trophiques, les connaissances qui en émanent restent difficilement transposables pour la modélisation du comportement du ^{14}C anthropogénique à une échelle locale (*i.e.* à l'aval proche des rejets des CNPE).

De ce fait, les modélisations actuelles du transfert du ^{14}C dans l'environnement aquatique - telles que celles actuellement utilisées dans la plateforme de modélisation ASNR/EDF SYMBIOSE - restent encore très simplifiées (Sheppard et al., 2006 ; Davis et al., 2009 ; Rout et al., 2024). En particulier, le rôle que peut jouer la spéciation du ^{14}C et les dynamiques des transformations biochimiques afférentes reste encore mal connu.

Le ^{14}C est en effet présent dans les milieux aquatiques sous différentes formes chimiques, en particulier le Carbone Inorganique Dissous (^{14}C -DIC pour *Dissolved Inorganic Carbon*), le

Carbone Organique Dissous (^{14}C -DOC pour *Dissolved Organic Carbon*), le Carbone Organique Particulaire (^{14}C -POC pour *Particulate Organic Carbon*). Cette spéciation (i.e. la distribution de l'élément entre différentes formes chimiques) est encore mal appréhendée. Selon sa forme chimique, le ^{14}C participe au cycle du carbone suivant différents processus biogéochimiques, et sa biodisponibilité vis-à-vis d'organismes du milieu aquatique (e.g. microorganismes, algues, poissons, crustacés) est variable. Sont ainsi synthétisés sur la Figure 1 l'ensembles des formes chimiques possibles pour le carbone et le ^{14}C dans un milieu aquatique, et l'ensemble des transformations biogéochimiques envisageables. En conséquence, afin d'améliorer la compréhension des transferts de ^{14}C dans l'environnement aquatique et ainsi accroître la robustesse des modèles opérationnels de transfert du ^{14}C , il est nécessaire de bien caractériser la spéciation du ^{14}C dans les effluents radioactifs liquides et dans le milieu récepteur dulçaquicole, ainsi que les transformations biogéochimiques afférentes.

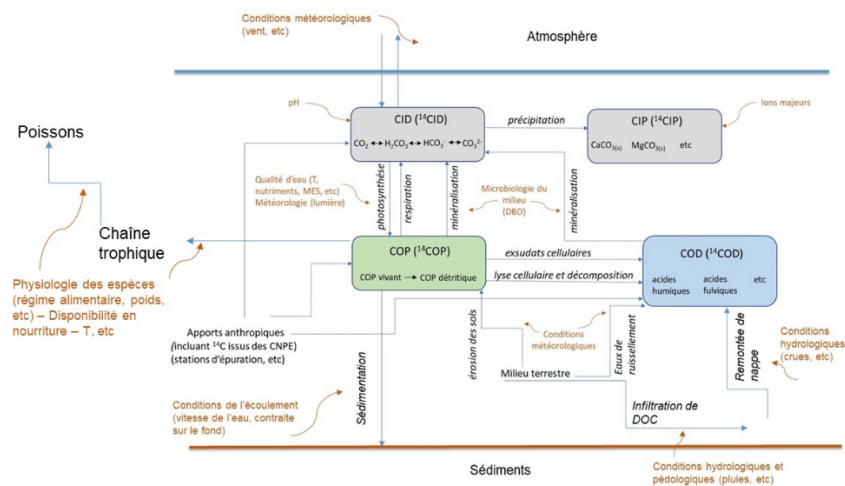


Figure 1 – Spéciation du carbone et ^{14}C dans un milieu aquatique et échanges biogéochimiques possibles

Etat de l'art

Plusieurs études ont partiellement traité de la spéciation du ^{14}C dans l'environnement d'installations nucléaires. Nous en fournissons ci-après une brève analyse afin d'identifier les acquis et les connaissances restant à acquérir.

Entre 2013 et 2016, une première thèse (Coularis, 2016a) a été conduite dans le cadre d'une collaboration entre EDF R&D, le LSCE et l'Université Paris-Saclay. Cette thèse n'avait pas pour objectif premier d'étudier spécifiquement la spéciation du ^{14}C dans l'environnement proche de CNPE, mais comprendre les dynamiques de transfert du carbone (stable) entre les différentes espèces chimiques au sein d'un bassin versant, en l'occurrence celui de la Loire. A cette fin, Coularis (2016a) a exploité le ^{14}C , et en particulier le ^{14}C anthropique, en tant que traceur de la dynamique du carbone stable. Le principal résultat de la thèse a été de quantifier le Freshwater Reservoir Effect (FRE)¹ à l'échelle du bassin (Coularis et al., 2016b). Bien que cette étude n'ait utilisé le ^{14}C que comme 'outil' et non comme 'finalité', elle a permis des avancées majeures dans l'exploitation de cet isotope en : (i) développant des outils métrologiques, en particulier des

¹ Le FRE se produit parce que le carbone dissous dans les eaux douces provient en partie de roches carbonatées anciennes, qui ne contiennent des teneurs appauvries en carbone 14. Les organismes aquatiques (poissons, mollusques, plantes) qui assimilent ce carbone "vieux" apparaissent donc artificiellement plus âgés qu'ils ne le sont réellement lors d'une datation au radiocarbone.

méthodes de prélèvement et d'analyse visant à distinguer les principales formes du ^{14}C en milieu aquatique (^{14}C -DIC ; ^{14}C -DOC ; ^{14}C -POC) ; (ii) quantifiant les « bruits de fond »² en ^{14}C -DIC, ^{14}C -DOC et ^{14}C -POC sur la Vienne et la Loire, en amont des CNPE ; (iii) estimant des bilans de masse en ^{14}C sur les continuum «proche amont-rejet-proche aval des CNPE ». Cependant, en raison de l'objectif même de la thèse et du nombre de mesures relativement faible lié aux contraintes analytiques, il reste encore de nombreuses questions quant au transfert et au devenir du ^{14}C en milieu aquatique.

Une thèse a été réalisée sous la direction de l'IRSN pour évaluer la spéciation du ^{14}C dans un fleuve nucléarisé, en l'occurrence la partie aval du Rhône (Bodereau, 2023). Ces travaux se sont focalisés essentiellement sur la résultante globale de l'ensemble des apports, et des dilutions issues des affluents non nucléarisés (Ardèche, Durance), sur la partie aval du fleuve. Les intrants issus des installations nucléaires du Rhône n'étaient toutefois pas connus et des hypothèses fortes quant aux processus de transformation (essentiellement photosynthèse du ^{14}C -DIC en ^{14}C -POC et minéralisation du ^{14}C -DOC) ont été faites. Ces travaux fournissent des informations riches sur les processus de transferts et d'accumulation du ^{14}C à l'échelle d'un bassin versant et sur ses apports au milieu marin. Toutefois, dans sa conclusion, Bodereau indique comme perspective des '*suivis à partir de prélèvements en aval d'un point de rejet (e.g., CNPE) permettant d'apporter des réponses supplémentaires sur cette distribution du ^{14}C pour chaque fraction ainsi que sur les mécanismes de transfert impliqués et de confirmer les observations faites à l'exutoire du fleuve*'.

De même, plusieurs études se focalisent sur les apports globaux au milieu marin issus de fleuves nucléarisés, essentiellement la Loire (Fontugne et al., 2002 ; Jean-Baptiste et al., 2018) et la Seine (Thibault et al., 2019, où le ^{14}C est exploité en tant que traceur (parmi d'autres) de la matière organique).

A l'issue de ces travaux, on peut ainsi considérer que l'état des connaissances actuelles permet de :

- disposer de moyens analytiques robustes pour la mesure de la spéciation du ^{14}C dans des échantillons naturels, la *spéciation* étant ici entendue comme discrimination entre ^{14}C -DIC, ^{14}C -DOC et ^{14}C -POC ;
- disposer d'informations sur les apports globaux de ^{14}C à l'échelle d'un bassin versant, et de caractériser ainsi les intrants dans le milieu maritime ;
- exploiter le ^{14}C en tant que traceur du cycle du carbone, en particulier pour quantifier les apports et pertes des milieux aquatiques.

Objectifs de la thèse

Si l'état de l'art a permis d'identifier des acquis, il permet aussi de mettre en lumière des manques de connaissances et des axes d'amélioration, en particulier sur les trois points suivants :

- Spéciation fine du ^{14}C dans les systèmes aquatiques. Comme indiqué ci-dessus, la *spéciation* du ^{14}C est aujourd'hui entendue comme la distinction entre trois fractions: ^{14}C -DIC, ^{14}C -DOC et ^{14}C -POC. Or, les DOC et POC constituent des ensembles physico-chimiques très hétérogènes : matière organique vivante vs détritique, granulométrie

² « bruits de fond » entre guillemets car les mesures incluent les apports anthropogéniques issus des tirs militaires des années 50-80. Cela ne correspond donc pas strictement au 'bruit de fond naturel'.

particulière variable, large gamme possible des colloïdes au sein du DOC, lipophilicité variable, etc. Dans la perspective de mieux évaluer le potentiel d'assimilation du ^{14}C par les organismes aquatiques (ce qui constitue la finalité ultime d'une évaluation de risque), il importe donc de développer des méthodes permettant d'atteindre une spéciation plus fine du ^{14}C , en particulier en discriminant plusieurs familles granulométriques et/ou moléculaires au sein des POC et DOC ;

- Spéciation et dynamique dans l'environnement proche des CNPEs et relation avec les caractéristiques des rejets. Comme indiqué ci-dessus, les études disponibles se sont focalisées sur les points aval des bassins versants et n'établissent pas de liens directs entre observations expérimentales et dynamique des rejets des installations nucléaires (période de rejets, quantités rejetées, spéciation du ^{14}C dans les réservoirs des installations nucléaires). Le ^{14}C ayant des origines à la fois naturelles et anthropogéniques, l'absence de références quantitatives aux rejets limite la discrimination entre processus naturels et processus influencés par les perturbations anthropiques. Il importe donc de focaliser une étude sur la dynamique du ^{14}C dans l'environnement proche d'une/de installation(s) nucléaires afin de focaliser l'analyse sur les marquages d'origine anthropique ;
- Echanges aux interfaces et compartiments d'accumulation du ^{14}C . Les études disponibles traitent peu des échanges de ^{14}C aux interfaces, en particulier aux interfaces eau-air et eau-sédiments. Or, ces échanges aux interfaces, mal quantifiés, peuvent influencer fortement la dynamique du ^{14}C dans les milieux aquatiques, soit en générant des pertes significatives (diffusion de ^{14}C de l'eau vers l'atmosphère), soit en produisant des points d'accumulation (sédiments de fond). Il importe donc d'étendre les analyses à des compartiments jusqu'alors peu investigués ;
- Modélisation de la dynamique du ^{14}C dans l'environnement des installations nucléaires. Les études disponibles ne proposent pas de modélisation intégrant l'ensemble (ou une grande part) des processus représentés sur le Figure 1. Les mesures réalisées doivent permettre d'apporter des éléments de calibration et/ou validation pour de tels modèles.

Dans ce contexte, les objectifs généraux du projet de recherche sont les suivants :

- Mieux caractériser la spéciation du ^{14}C dans l'environnement proche d'installations nucléaires, en développant et mettant en œuvre des protocoles de prélèvement et d'analyse permettant une spéciation plus fine que celle classique (^{14}C -DIC, ^{14}C -DOC et ^{14}C -POC) ;
- Mieux caractériser les échanges aux interfaces de ^{14}C et identifier les compartiments potentiels d'accumulation (sédiments - à l'échelle des cycles étiages-crués) en aval des installations nucléaires ;
- Mieux discriminer les processus naturels et les processus d'influence anthropique dans la dynamique du C en rivière, en établissant un lien entre spéciation observée dans les milieux naturels et spéciation observée dans la technosphère ;
- Mieux modéliser la dynamique du ^{14}C dans les milieux aquatiques sur le continuum amont-rejet-proche aval des installations nucléaires.

A cette fin, le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE, UMR CEA CNRS UVSQ) et le Laboratoire National d'Hydraulique et Environnement (LNHE, EDF R&D) se sont

associés afin d'unir leurs compétences notamment dans la caractérisation fine de ^{14}C en concentrations trace dans l'environnement et dans la modélisation intégrée des processus biogéochimiques.

Axes de travail

La thèse s'articulera autour de trois axes principaux :

- la collecte *in situ* d'échantillons sur un continuum amont-rejet-aval d'un CNPE, avec les fractionnements *in situ ad hoc* permettant une analyse ultérieure des différentes formes de ^{14}C aux points de prélèvement ;
- l'analyse des échantillons, en particulier dans les laboratoires du LSCE, afin de déterminer les activités en ^{14}C et concentrations en ^{12}C dans les différentes fractions ciblées ;
- l'intégration des nouvelles données conjointement avec les données déjà disponibles (Coularis, 2016 ainsi que les données des campagnes de mesure réalisées au préalable par EDF) et connaissances dans un modèle simulant la dynamique du ^{14}C sur le continuum amont-rejet-aval d'un ou plusieurs CNPE.

1. Collecte in situ d'échantillons

La thèse se concentrera sur un périmètre restreint autour du/des CNPE sélectionné(s), incluant généralement deux points d'observation : un point en amont et un point en aval proche (station de bon mélange des effluents dans le milieu récepteur).

Selon la configuration du site, des échantillons de sédiments de fond seront également collectés, soit par des techniques de carottage ou de bennes à sédiments, soit (si la quantité de sédiments de fond est trop faible lors de la campagne) par des systèmes de collecte *ex situ* (trappes à sédiments ou autres).

Il est précisé qu'en parallèle des campagnes d'échantillonnage prévues dans la thèse, des échantillons seront également collectés simultanément dans les réservoirs de stockage des effluents avant rejet du CNPE. Ces échantillons ne seront pas traités par le LSCE en raison des activités trop élevées, mais dirigés vers un laboratoire spécialisé dans les analyses radioactives. Ils seront toutefois disponibles pour la thèse afin d'évaluer le continuum amont-rejet-aval du ^{14}C .

Afin d'introduire un caractère innovant dans la thèse, on s'attachera à développer, puis mettre en œuvre, des fractionnements plus fins que le fractionnement classique ^{14}C -DIC, ^{14}C -DOC et ^{14}C -POC. Les fractionnements supplémentaires envisagés visent à discriminer les différentes classes de taille en phase colloïdale par des techniques d'ultrafiltration (par exemple, fractionnement en classes <1 kDa, $1 < 10$ kDa, $10 < 100$ kDa, 100 kDa < 0.2 μm). La prise en compte de ces classes de taille permet d'atteindre les propriétés des composés organiques dissous, notamment leur mobilité, leur réactivité et leur accessibilité biologique. Les petites fractions tendent à être plus facilement assimilables, tandis que les fractions colloïdales plus larges présentent une biodisponibilité plus limitée ou différée.

Ces fractionnements ont un fort intérêt dans la perspective d'une modélisation intégrée de la dynamique du ^{14}C en aval des CNPE incluant la dimension biologique, dans la mesure où ces

différentes fractions peuvent présenter des biodisponibilités différentes vis-à-vis des organismes du milieu (e.g. poissons).

2. Analyse du ^{12}C et du ^{14}C dans les différentes fractions dérivées des échantillons d'eau

Les fractions obtenues à l'issue de l'étape 1 seront analysées en teneur en carbone et en ^{14}C par le LSCE pour les échantillons non enrichis en ^{14}C , dans la limite de 250 mesures³ ^{14}C réalisables sur la durée de la thèse (hors standards). Les fractions provenant d'échantillons susceptibles d'être enrichis en ^{14}C seront quant à elles, analysées, pour leur teneur en carbone et leur activité ^{14}C , au sein de laboratoires habilités, extérieurs au LSCE.

Le doctorant sera formé et encadré aux techniques d'analyses par le personnel du LSCE et traitera la majorité des échantillons, sous la supervision de son/ses encadrant(e)(s) sur place.

3. Modélisation de la dynamique du ^{14}C sur le continuum

Les bases fondamentales permettant de modéliser le cycle du carbone dans les systèmes aquatiques existent et méritent un travail de sélection, les formulations mathématiques étant nombreuses pour certains processus.

Un travail d'harmonisation des modèles (par exemple, mise en cohérence des modèles de qualité d'eau traitant exclusivement du ^{12}C et des modèles radioécologiques traitant du ^{14}C) est à ce jour nécessaire.

Le développement du modèle devra suivre les étapes classiques, à savoir :

1. La définition conceptuelle du modèle (identification des processus, sélection des formulations mathématiques) ;
2. La paramétrisation du modèle, incluant la paramétrisation générique (i.e. commune à tous les cours d'eau) ou spécifiques (i.e. valeurs de paramètres dépendant du cours d'eau) ;
3. Le calage
4. Confrontation du modèle à des données.

Les données collectées dans le cadre de la thèse serviront à la phase de calage et/ou de validation du modèle.

Le travail de modélisation sera encadré par EDF-R&D-LNHE et bénéficiera de l'expertise en géochimie et cycle du carbone du LSCE.

³ 1 point de collecte := 1 échantillon = plusieurs fractions = plusieurs mesures

Calendrier de la thèse

Année	2026	2027				2028				2029		
Trimestre	T4	T1	T2	T3	T4	T1	T2	T3	T4	T1	T2	T3
Définition des techniques de fractionnement complémentaires												
Définition des techniques de collecte des sédiments de fond												
Préparation des campagnes												
Réalisation de campagnes d'échantillonnage												
Formation aux techniques d'analyse												
Analyse des échantillons												
Définition et prise en main du modèle												
Modélisation												
Valorisation des résultats												
Rédaction mémoire												

Encadrement et lieu des travaux

La thèse sera conduite dans le cadre d'un dispositif CIFRE, garantissant une collaboration étroite entre le monde académique et industriel. Elle associera EDF, en charge de l'organisation des campagnes d'échantillonnage et du pilotage des travaux de modélisation, et le LSCE, qui assurera les analyses chimiques au sein de ses laboratoires ou de ceux de ses partenaires. Cette complémentarité permettra de croiser les expertises terrain, analytique et numérique.

La répartition du temps de présence envisagée est :

- 6 premiers mois à EDF R&D Chatou ;
- 18 mois au LSCE ;
- 12 dernières mois à EDF R&D Chatou.

Les encadrants de la thèse seront :

- A EDF R&D, Chatou :

- Philippe Ciffroy, Chercheur Senior en Radioécologie, Ecotoxicologie et Risques sanitaires ;
- Marilia Morganti, Chercheur en radioécologie
- Mélanie Lorthioy, Chef de projet R&D

- Au LSCE, Gif sur Yvette :
 - Christine Hatté, HDR, Correspondante scientifique du laboratoire de datation au ^{14}C , *ECHOMICADAS*. Professeur à la Silesian University of Technology, Gliwice (Pologne) ;
 - Nadine Tisnérat-Laborde, ingénieure-chercheuse CEA. Spécialiste de la préparation et de l'analyse du ^{14}C par spectrométrie de masse par accélérateur (AMS).
 - François Thil, ingénieur de recherche CNRS, responsable du *Laboratoire de recherche en datation ^{14}C – ECHOMICADAS*.

EDF :

EDF R&D

Département LNHE – Laboratoire National d'Hydraulique et Environnement
6 quai Watier
78401 CHATOU

LSCE :

Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement – LSCE/IPSL, UMR CEA-CNRS-UVSQ
8212
CEA Saclay, Bat 714, Site de l'Orme des Merisiers
Chemin de Saint Aubin – RD 128
F-91191 Gif sur Yvette Cedex – France

Bibliographie

- Bodereau, N. (2023). *Sources et spéciation du carbone 14 (14 C) dans un fleuve nucléarisé: le cas du Rhône aval* (Doctoral dissertation, Aix-Marseille).
- Castrillejo, M., Witbaard, R., Richardson, C. A., Dekker, R., Welte, C., Wacker, L., & Christl, M. (2020). Impact of nuclear fuel reprocessing on the temporal evolution of marine radiocarbon. *Science of the Total Environment*, 738, 139700.
- Copard, Y., Eyrolle, F., Grosbois, C., Lepage, H., Ducros, L., Morereau, A., ... & Desmet, M. (2022). The unravelling of radiocarbon composition of organic carbon in river sediments to document past anthropogenic impacts on river systems. *Science of The Total Environment*, 806, 150890.
- Coularis, C. C. (2016a). *Dynamique et transfert du carbone dans le bassin versant de la Loire: Traçage par les isotopes du carbone* (Doctoral dissertation, Université Paris Saclay (COMUE)).
- Coularis, C., Tisnérat-Laborde, N., Pastor, L., Siclet, F., & Fontugne, M. (2016b). Temporal and spatial variations of freshwater reservoir ages in the Loire River watershed. *Radiocarbon*, 58(3), 549-563.
- Crisp, D., Dolman, H., Tanhua, T., McKinley, G. A., Hauck, J., Bastos, A., ... & Aich, V. (2022). How well do we understand the land-ocean-atmosphere carbon cycle?. *Reviews of Geophysics*, 60(2), e2021RG000736.
- Eyrolle-Boyer, F., Antonelli, C., Renaud, P., & Tournieux, D. (2015). Origins and trend of radionuclides within the lower Rhône River over the last decades. *Radioprotection*, 50(1), 27-34.
- Fontugne, M., Sadouni, N., Saliot, A., Siclet, F., Bouloubassi, I., & Hatté, C. (2002). 14 C activity in dissolved mineral carbon and identified organic matter in the Loire estuary (France). *Radioprotection*, 37(C1), C1-775.
- Jean-Baptiste, P., Fontugne, M., Fourré, E., Marang, L., Antonelli, C., Charmasson, S., & Siclet, F. (2018). Tritium and radiocarbon levels in the Rhône river delta and along the French Mediterranean coastline. *Journal of environmental radioactivity*, 187, 53-64.
- Post, D. M. (2002). Using stable isotopes to estimate trophic position: models, methods, and assumptions. *Ecology*, 83(3), 703-718.
- Rout, S., Yadav, S., Pulhani, V., & Kumar, A. V. (2024). A critical review of radiocarbon in environment. *Discover Environment*, 2(1), 138.
- Sheppard, S. C., Ciffroy, P., Siclet, F., Damois, C., Sheppard, M. I., & Stephenson, M. (2006). Conceptual approaches for the development of dynamic specific activity models of 14C transfer from surface water to humans. *Journal of environmental radioactivity*, 87(1), 32-51.
- Siclet, F., Luck, M., Le Dortz, J. G., Damois, C., Ciffroy, P., Hendrickx, F., & Courivaud, J. R. (2002). Radionuclides concentrations in the Loire river system resulting from routine discharges of five nuclear power plants: assessment of dose to man. *Radioprotection*, 37(4), 399-410.
- Thibault, A., Derenne, S., Parlanti, E., Anquetil, C., Sourzac, M., Budzinski, H., ... & Huguet, A. (2019). Dynamics of organic matter in the Seine Estuary (France): bulk and structural approaches. *Marine Chemistry*, 212, 108-119.
- Vander Zanden, M. J., & Rasmussen, J. B. (1999). Primary consumer $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$ and the trophic position of aquatic consumers. *Ecology*, 1395-1404.