

Recherche d'éléments radioactifs naturels dans quelques lichens foliacés

Monitoring of natural radioactive elements in some foliose lichens

Olivier DAILLANT (*), Gerald KIRCHNER (**), Laurent JACQUIOT (***),
Alain LECOINTE (****), Claude TILLIER (*****), Chantal VAN HALUWYN (*****)

RÉSUMÉ

Des éléments radioactifs des familles de l'Uranium 238 et du Thorium 232 ont été recherchés dans des échantillons de *Parmelia sulcata* et de *Xanthoria parietina* provenant de biotopes différents. Ces espèces ont été utilisées dans le suivi de la bio-accumulation de ces éléments, émis par une centrale thermique fonctionnant au charbon, en Saône-et-Loire. Les concentrations, naturelles ou anthropiques, de la plupart de ces radioéléments dans les lichens diminuent selon le site de la façon suivante : décharge radifère > zone fortement uranifère > zone industrielle > zone rurale. Le caractère problématique de certains de ces éléments est souligné et un tableau de résultats obtenus sur des échantillons de différentes espèces d'une station à sol uranifère est proposé à titre de référence.

ABSTRACT

Samples of *Parmelia sulcata* and *Xanthoria parietina* from different biotopes have been analysed for elements of the series of uranium 238 and thorium 232. These species have been used as bio-monitors in different cases : urban areas, coal fired power plant, tip for uranium-mining residues. The concentration of most of these elements in lichens is decreasing as follows : radium waste-disposal site > area with uranium-rich soil > urban area > rural area. Road traffic was not found to increase notably the presence of radioactive lead in the environment. The two foliose lichens seem to have a comparable concentration ability, but *Parmelia sulcata* appeared to be more reliable. Some of the elements under investigation could be particularly problematic from a sanitary point of view : the intake limits in case of inhalation are very low and the atmospheric deposition is not negligible ; this is particularly so for lead 210 and thorium 228. These elements should not only be monitored on a spatial basis, but investigated at regular intervals in time since their global abundance seems to have increased in the last decades. The authors have presented the papers reviewed on a synoptic table ; they also give the results of analyses on different species sampled in an area with a uranium-rich soil : these results could be considered as a reference for natural maximal concentrations.

The explanations of the tables are also given in english.

Introduction

Les capacités de bio-accumulation des éléments-traces et d'éléments radioactifs des lichens sont désormais notoires ; il est un domaine cependant où les recherches ont été moins nombreuses même si une des premières publications sur le sujet remonte à 1965 (Hill) : il s'agit des éléments radioactifs naturels des familles de l'Uranium 238 et du Thorium 232.

Il s'agit pourtant d'un domaine pouvant être important à plus d'un titre : les radionucléides en question sont très souvent de « très forte radio-

(*) Observatoire mycologique, F. 71 250 Mazille, France.

(**) Universität Bremen, Fachbereich Physik, Bibliothekstr., PO 330 440, D. 2800 Bremen, Bundesrepublik Deutschland.

(***) Observatoire mycologique, 45, rue du Berry, F. 01 000 Bourg-en-Bresse, France.

(****) ACRO (Association pour le contrôle de la radioactivité dans l'Ouest), 16, rue Savorgnan de Brazzan, F. 14000 Caen, France.

(*****) DDASS (Direction Départementale des Affaires Sanitaires et Sociales) de Saône-et-Loire, Service de Protection Sanitaire de l'Environnement, Cité Administrative - F. 71 000 Mâcon, France.

(*****) Université de Lille II, Faculté de Pharmacie, rue du Prof. Laguesse - F. 59 000 Lille, France.

toxicité » ; de plus, ils sont de plus en plus présents dans notre environnement puisque de nombreuses activités humaines les mettent en circulation.

Seront présentés ici les résultats de mesures sur des lichens prélevés en Saône-et-Loire, France, qui est non seulement un département avec une grande variété de biotopes, mais a aussi connu très tôt l'industrialisation, du fait de ses gisements miniers : gisements de charbon du bassin minier de Montceau-les-Mines, schistes bitumineux d'Autun, nombreux minerais dont l'uranium : c'est en brumaire an VIII (Octobre 1800) que François-Ferdinand de Champaud rechercha et découvrit près d'Autun l'autunite, un phosphate urano calcique, pouvant contenir théoriquement 52 % d'uranium élément (CHERMETTE 1992).

Eléments bibliographiques

Les références bibliographiques, en français ou en anglais, dont les auteurs ont pu disposer figurent sur le tableau I, où sont indiqués les éléments analysés, les espèces, le lieu de prélèvement et le type de recherche (in situ ou laboratoire). Cette revue ne prétend pas à l'exhaustivité ; en particulier les articles où il est question d'analyses de l'Uranium ou du Thorium en tant qu'éléments chimiques n'ont pas tous été repris. Nous avons choisi de garder les unités de mesure telles que présentées dans les publications ; rappelez que :

- 1 becquerel (Bq) correspond à une désintégration par seconde ;

- 1 DPM (disintegration par minute) ou CPM (count per minute), correspond à une désintégration par minute : donc 1 DPM = 60 Bq.

- 1 curie (Ci) correspond à l'activité d'un gramme de radium 226. 1 Ci = $3,7 \times 10^{10}$ Bq ; l'unité souvent utilisée, le nanocurie (nCi) correspond donc à 37 Bq.

- La présence d'uranium est souvent exprimée en sous-multiples du gramme ; 1 g de ^{238}U = $1,24 \times 10^4$ Bq (voir Tableau II).

Voici quelques éléments résultant de la lecture des principaux articles sur la question :

En ce qui concerne *Parmelia sulcata*, ce lichen a été utilisé par ECKL & al. (1984, 1986) en Autriche : les éléments descendants de l'Uranium 238 se sont tous avérés être inférieurs au seuil de détection ; par contre, les concentrations en ^{238}U ont été mesurées sur *Cladonia furcata* (39 pCi g⁻¹ de Matière Sèche) et sur *Lasallia pustulata* (de 16 à 43 pCi g⁻¹) ; les concentrations en ^{210}Pb étaient de 0,7 pCi/g MS (matière sèche) pour *L. pustulata*, de 0,9 pour *C. furcata*, 1,3 pour *Pseudevernia furfuracea*, 1,5 pour *Platismatia*

glauca, 1,8 pour *Hypogymnia physodes* et 1,9 pour *Parmelia saxatilis*.

DE BRUIN & al. (1987), DE BRUIN & VAN WIJK (1988) et DE BRUIN (1990) font apparaître des résultats sur l'Uranium et le Thorium dans la région De Kempen (frontière Belgique/Pays-Bas) et dans tous les Pays-Bas : en moyenne 0,57 mg U.kg⁻¹ (0,089-2,7 mg.kg⁻¹) et 1,2 mg Th.kg⁻¹ (0,14-8,9).

HILL (1965) mesure le ^{210}Po , à prédominance d'origine naturelle, et trouve des rapports $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ de 1 avec *Cladonia alpestris* de Laponie (6 600-8 100 pCi ^{210}Po .kg⁻¹ MS), *C. alpestris* du Canada (3 500), et *Caloplaca elegans* d'Angleterre (7 800-10 000). HOLTZMAN (1966), sur *Cladonia alpestris* de Finlande (Inari) mesure 4,5 pCi ^{210}Pb .kg⁻¹ (Matière sèche) et 0,0035 pour ^{226}Ra . D'autres résultats sont donnés mais concernent des échantillons regroupant plusieurs espèces, ainsi que la teneur en ^{210}Pb et ^{210}Po de rumens de caribous d'Alaska, contenant surtout des lichens. JAWOROWSKI (1966), sur des échantillons d'espèces distinctes de *Cladonia*, montre une augmentation de 1955 à 1965, de la bio-accumulation du ^{210}Pb . En revanche d'août 1961 à juillet 1966, sur *Cladonia alpestris*, cette tendance n'apparaît pas (KAURANEN & MIETTINEN, 1969). Ces auteurs mesurent une plus forte teneur en ^{210}Pb en Laponie qu'en Finlande du sud. En 1970 BLANCHARD & MOORE publient des résultats sur le ^{210}Pb et le ^{226}Ra concernant plusieurs sites d'Alaska et différentes espèces collectées en 1923, 1948 et 1949. PERSSON & al. (1974) constatent, en Suède, sur des *Cladonia*, de 1882 à 1972, une diminution du rapport $^{210}\text{Pb}/\text{Pb}$ stable après 1940 due à l'augmentation du Pb stable. Ce rapport s'accroît avec la latitude par augmentation du ^{210}Pb et diminution du Pb stable. De plus le fractionnement vertical de la couverture lichénique montre une plus grande accumulation dans les trois premiers centimètres apicaux. SHEARD (1986 a,b) étudie la répartition intra et interrégionale du ^{210}Pb et du ^{226}Ra dans des *Cladonia* entre deux régions dont l'une est uranifère. L'origine atmosphérique semble prépondérante. Sur *Cladonia rangiferina* du New-Brunswick, Canada, ELLIS & SMITH (1987) modélisent la dynamique d'absorption de radioéléments, en la normalisant par rapport au ^7Be , et définissent des temps biologiques de résidence dans les lichens (1-2 ans pour ^{210}Pb). Au Brésil, SANTOS & al. (1993) définissent des teneurs en ^{210}Pb de 385 et 200 Bq.kg⁻¹ (MS) respectivement sur un plateau uranifère et dans un site témoin. Mais le nom de l'espèce n'est pas mentionné. THOMAS & al. (1994) mesurent au Canada, dans trois régions des North-West Territories, dans *Cladonia mitis*, 211-513 Bq ^{210}Pb .kg⁻¹ MS (moyenne 275 ± 17) et dans *Cetraria nivalis* 379-1038 (643 ± 32)

BENSON & al. (1983) trouvent dans des lichens non déterminés, prélevés autour de

Tableau I.

Publications examinées présentées sous forme de tableau synoptique, avec indications géographiques, le type des études, les éléments recherchés et les espèces examinées

Tableau I.

Papers examined presented on a synoptic table with the geographic origin, the type of research, the elements analysed and the species monitores

Auteur(s)	Site(s)	Type(s)	Elément(s)	Espèce(s)
BENSON 1983	CAN	is	²²⁸ Ac ⁷ Be ²¹⁴ Pb ¹⁴⁴ Ce ¹³⁷ Cs ⁴⁰ K ⁹⁵ Nb ²¹² Pb ²¹⁴ Pb ²²⁶ Ra ¹⁰³ Ru ¹⁰⁶ Ru ¹²⁵ Sb ²²⁸ Th ²⁰⁸ Tl ⁹⁵ Zr	An N.D.
BOILEAU 1985a,b		I	U	Cra
ECKL 1984	AUTRICHE	is	¹⁴⁴ Be ¹³⁷ Ce ¹³⁷ Cs ⁴⁰ K ⁹⁵ Nb ²³⁸ U ⁹⁵ Zr	Ao CEcu CEe CEi CfU Cmi Cra Hp LAPu PEa PLg PSf STa UMc Umd USfi
ELLIS 1987	CAN, SO N-Brunswick	is	⁷ Be ¹⁴¹ Ce ¹⁴⁴ Ce ¹³⁷ Cs ⁹⁵ Nb ²¹⁰ Pb ¹⁰³ Ru ¹⁰⁶ Ru ⁹⁵ Zr Pu	Cra
HEINRICH 1989	AUTRICHE	is	²²⁸ Ac ^{110m} Ag ²¹⁴ Bi ¹⁴⁴ Ce ¹³⁷ Cs ¹³⁷ Cs ⁴⁰ K ⁹⁵ Nb ²¹² Pb ²¹⁴ Pb ²²⁶ Ra ¹⁰⁶ Ru ¹⁰³ Ru ¹²⁵ Sb ²⁰⁸ Tl ⁹⁵ Zr	Ao Cra Hp Psu PSf
HILL 1965	ANGLETERRE, CAN, LAPONIE	is	²¹⁰ Pb ²¹⁰ Po	Cal CAel
HOLM 1975, 1976	CO SUEDE, Lake Rogen; FIN	is	²³⁸ Pu ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	Cal Cam Cb Cra
HOLTZMAN 1966	USA, NO Alaska, N-Hampshire; FIN,	is	²¹⁰ Pb ²¹⁰ Po ²²⁶ Ra	An Ao C Cal Csy CORd N.D.
JAAKKOLA 1983	S FIN et Laponie	is	²⁰⁴ Pb ²⁰⁶ Pb ²⁰⁷ Pb ²⁰⁸ Pb	N.D.
JAWOROWSKI 1966	le long du 20° méridien de SPITZBERG à S BULGARIE	is	²¹⁰ Pb	Cal CfU Cmi Cr Cra Csy
KWAPULINSKI 1985b	idem	is	²²⁶ Ra ²²⁸ Ra	idem
PERSSON 1974	C SUEDE, lac Rogen, Musée Bot. de Lund	is	²¹⁰ Pb ²¹⁰ Po Pb	C Cal
SANTOS 1993	BRESIL, Pocos de Caldas, Joinville	is	²¹⁰ Pb	N.D.
SCHWARTZMAN 1987	USA, Ile Plummers, Great Falls, Rock Creek Park	is	²¹⁰ Po Cd Pb V Zn	PSPb
SHEARD 1986a	CAN, N Saskatchewan	is	²¹⁰ Pb ²¹⁰ Po ²²⁸ Ra U	Cmi Cra Cste
SHEPPARD 1984	CAN, SE Manitoba, Nopiming Provincial Park	is	U	C Ummu
SMITH 1990	E CAN, N-Brunswick, Nova Scotia	is	⁷ B ¹³⁴ Cs ¹³⁷ Cs ¹³¹ I ¹⁰³ Ru	Cra
TAYLOR 1979	CAN	is	⁷ Be ¹⁴⁴ Ce ¹³⁷ Cs ⁹⁵ Nb ²²⁸ Ra ¹⁰³ Ru ¹⁰⁶ Ru ¹²⁵ Sb ²²⁸ Th ⁹⁵ Zr	Ao Cb Cra ST N.D.
THOMAS P.A. 1994	N CAN, Terr. NW, Baker Lake, Snowdrift, Kasba Lake	is	²¹⁰ Pb ²¹⁰ Po	Cmi CEni

N Nord
S Sud
E Est
O Ouest
C Centre

B Belgique
CAN Canada
DK Danemark
F France
FIN Finlande
NL Pays-Bas

is in situ
I étude en laboratoire
T transplant

N.D. non déterminé
ab Alectoria bicolor
Anig A. nigricans
Anit A. nitidula

Ao A. ochroleuca
C Cladonia/
Cladonia spp
Cal C. alpestris
Car C. arbuscula
Cb C. bellidiflora
Cce C. cenotea
Cfu C. furcata
Cmi C. mitis
Cf C. rangiferina
Cra C. rangiferina
Cst C. subtenius
Cste C. stellaris
Csu C. subulata
Csy C. sylvatica
Cu C. uncialis

CAel Caloplaca
elegans

CANDv Candelari
vitellina
CE Cetraria spp
CEce C. cetrarioides
CEcu C. cucullata
CED C. delisei
CEe C. ericetorum
CEi C. islandica
CEn C. nivalis
CEr C. richardsonii
CET C. tilesii
CORd Cornicularia
divergens
DAa Dactylina arctica
Ep Evernia prunastri
Hp Hypogymnia
physodes

Lco Lecanora
conizaeoides
Lr L. rubina
Lapu Lasallia
pustulata
LEP Lepraria spp
Nar Nephroma
arcticum
NRA Neopogon
antarcticus
Pch Parmelia
chlorochroa
Pcons P. conspersa
Po P. omphalodes
Ppr P. praesorediosa
Psa P. saxatilis
Psu P. sulcata
Pta P. taractica

PEa Peltigera
aphthosa
PEc P. canina
PLg Platismatia
glauca
PSf Pseudevernia
furfuracea
PSPbPseudoparmelia
baltimorensis
Rst Ramalina
stenospora
SPg Spaerophorus
globosus
ST Stereocaulon spp
STA S. alpinum
STpa S. paschale

STs S. saxatile
Te Trypethelium
eluteriae
UM Umbilicaria spp
UMc U. cylindrica
UMd U. deusta
UMy U. hyperborea
UMle U. leiocarpa
UMly U. lyngaei
UMmu U. muhlenbergii
UMmur U. murina
US Usnea spp
USfi U. filipendula
Xpa Xanthoria
parietina

Tableau II

Tableau de désintégration des radionucléides des chaînes de l'Uranium 238 et du Thorium 232, avec les périodes et les activités spécifiques ; la lettre a exprime les années, la lettre h les heures, la lettre m les minutes et la lettre s les secondes ; les éléments « ombrés » sont ceux étudiés dans cet article et ceux en italiques ont été utilisés pour les analyses.

Table II.

Chart of the radionuclides of the Uranium 238 and Thorium 232 series, with their half-lives and their specific activity ; the letter a stands for years, h for hours, m for minutes and s for seconds ; the nuclides in dark have been studied in this paper and those written in cursive have been used for analyses.

Élément	Période		Remarques	Activité spécifique
			FAMILLE DE L'URANIUM 238	(Bq/g)
U 238	4,5 × 10 ⁹ a		nucléide primordial	1,24E + 05
Th 234	24 d			8,60E + 15
Pa 234	1,2 m			2,48E + 20
U 234	2,5 × 10 ⁵ a			2,26E + 09
Th 230	8 × 10 ⁴ a			7,19E + 09
Ra 226	1600 a			3,70E + 11
Rn 222	3,8 d		GAZ !	5,73E + 16
Po 218	3 m			1,06E + 20
Pb 214	26,8 m			1,21E + 19
Bi 214	19,8 m			1,64E + 19
Po 214	162 µs			1,20E + 26
Pb 210	22 a			2,86E + 13
Bi 210	5 d			4,60E + 16
Po 210	138 d	↓		1,67E + 15
Pb 206	STABLE			
			FAMILLE DU THORIUM 232	
Th 232	1,4 × 10 ¹⁰ a		nucléide primordial	4,00E + 04
Ra 228	5,7 a			1,02E + 14
Ac 228	6,13 h			8,30E + 17
Th 228	1,9 a			3,06E + 14
Ra 224	3,64 d			5,92E + 16
Rn 220	55,6 s		GAZ !	3,41E + 20
Po 216	0,15 s			1,29E + 23
Pb 212	10,6 h			5,16E + 17
Bi 212	60,6 m		2/3 → Po 212 et 1/3 → Tl 208	5,41E + 18
Po 212	0,3 µs		2/3 des désintégrations	6,56E + 28
Tl 208	3,1 m	↓	1/3 des désintégrations	1,08E + 20
Pb 208	STABLE			

zones uranifères dans le Keewatin, Canada, NWTerr., des teneurs de $58,4 \pm 2,6$ coups $1\ 000\ min^{-1}.g^{-1}$ MS pour le ^{226}Ra , $47,5 \pm 1,9$ pour le ^{214}Pb et $25,0 \pm 2,2$ pour le ^{214}Bi . En Autriche, HEINRICH & al. (1989) estiment la participation des radioéléments des séries ^{238}U (^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{232}Th (^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl) à 0 % de la radioactivité totale dans *Cladonia rangiferina*. En revanche dans *Pseudevernia furfuracea*, on a 11 Bq.kg⁻¹ MS pour ^{226}Ra et 11 pour ^{214}Bi , ce qui correspond à 15 %. En 1985, KWAPULINSKI & al. notifient que les teneurs en ^{226}Ra et ^{228}Ra , chez *Umbilicaria cylindrica*, *U. murina* et *U. hirsu-*

ta, augmentent avec l'altitude. Pour SVOBODA & al. (1985), avec un échantillon non déterminé, au Canada, Keewatin, sur le site uranifère de Lone Gull, la teneur en ^{226}Ra est de $60,0 \pm 7,2$ pCi.g⁻¹ PS.

PILEGAARD (1993), dans le sud-ouest du Groenland, avant et après la mise en exploitation d'une mine de niobium, mesure respectivement autour du site $0,01 \pm 0,01$ mg U.kg⁻¹ PS ($0,01-0,03$) et $0,03 \pm 0,04$ ($0,01-0,13$) dans *Cetraria nivalis*. Pour Th, les mesures sont $0,08 \pm 0,02$ ($0,05-0,12$) et $0,12 \pm 0,03$ ($0,05-0,14$). Sur le site même, il y a 0,54 pour U et 0,16 pour Th, mais sur un seul échantillon. En 1995, NAZAROV & al.

publient des teneurs en U et Th < 0,02 ppm avec des *Usnea* de l'île Alexandra en Terre François-Joseph. SHEPPARD & THIBAUT (1984) montrent une accumulation différentielle entre la haute terre et la basse terre d'une même région du Canada, sud-est Manitoba : 29,0 v/v 6,6 µg U.g⁻¹ de cendre pour *Umbilicaria muhlenbergii* : 5,0 v/v 3,0 pour *Cladonia*. ERDMAN & GOUGH (1977) mesurent 0,90 ppm sur cendre de *Parmelia chlorochroa* prélevée dans un site uranifère à la frontière du Wyoming et du Montana, USA. Dans un autre site, au sud du précédent, GOUGH & ERDMAN (1977) montrent que la teneur en U de ce lichen diminue avec la distance par rapport à une usine thermoélectrique. PILEGAARD (1985), toujours au Groenland, mesure 1,1 ± 45 % ppm MS d'U dans *Cetraria nivalis* d'une zone minière et 0,27 en dehors. Pour Th, les résultats sont respectivement 0,08 ± 90 % et 0,077 ± 64 %.

Au laboratoire, BOILEAU & al. (1985 a,b) étudient l'absorption d'ions uranyles par *Cladonia rangiferina*. Celle-ci augmente selon la série anion UO₂-oxalate << neutre UO₂-phthalate << cation UO₂²⁺. Leur toxicité est différente et dépend de l'état physiologique du lichen. L'Uranium entraîne une diminution du taux de fixation du carbone.

Récemment, JERAN & al. (1995) ont utilisé des lichens épiphytes transplantés pour le suivi de la contamination atmosphérique résultant de la présence d'une mine d'uranium en Slovaquie.

Nous n'avons trouvé que deux publications se rapportant à *Xanthoria parietina* et à la radioactivité naturelle. En France, dans le Nord, à Gravelines, VAN HALUWYN & DAILLANT (1992) trouvent sur deux échantillons, respectivement, pour ²²⁸Ac, 17 ± 5,1 et < 31,4 mBq.g⁻¹ Matière Sèche (MS) ; en ²¹⁴Bi < 15,1 et 21 ± 11,6 ; en ²¹⁴Pb < 15,2 et < 15,1. A Mâcon, France, Saône-et-Loire, DAILLANT & JACQUIOT (1995) mesurent des teneurs en Bq.kg⁻¹ MS, de 7,7 ± 31 % pour ²²⁶Ra, de 3 ± 66 % pour ²²⁸Ra et de 118 ± 7 % pour ²¹⁰Pb.

A l'examen de cette revue bibliographique, il ressort que les recherches se sont essentiellement situées à des latitudes élevées, souvent dans des régions arctiques et que la majorité d'entre elles étaient axées sur des prélèvements in situ (alors que des transplants sont également possibles). Les lichens les plus étudiés ont été les espèces terricoles, puis les saxicoles, alors que les épiphytes n'ont retenu l'attention que de peu d'auteurs. De même, certains éléments (²³⁸U, ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra et ²²⁸Ra en particulier) ont été plus souvent recherchés que d'autres (thorium 228 par exemple).

Les études se penchent sur les principaux représentants des familles de l'uranium et du thorium chez les lichens foliacés épiphytes se développant sous un climat tempéré en Europe occidentale font donc défaut.

Matériel et méthodes

1. Les échantillons

1.1. Les lieux de prélèvement

Les lichens ont presque tous été prélevés en Saône-et-Loire, dans le Centre-Est de la France (quelques autres échantillons sont présentés à titre indicatif), dans différents sites à des altitudes allant de 180 à 580 mètres. Les lieux de prélèvements ont été choisis en fonction de critères précis :

1.1.1. Intégration dans une étude d'ensemble sur la bio-indication par les lichens

- Chalon-sur-Saône
- Mâcon
- Autun
- Le Creusot.

1.1.2. Etude de l'impact d'une Centrale thermique utilisant un charbon riche en radioéléments naturels : charbon des mines de Blanzay

Cette étude s'articulait dans une étude plus vaste utilisant les lichens comme bio-indicateurs de la qualité générale de l'air dans le bassin minier.

- Montceau-les-Mines et stations environnantes.

1.1.3. Analyses de lichens se développant dans une station dont le sol est particulièrement riche en descendants de l'uranium et du thorium ce qui permet de proposer des valeurs à titre de fond naturel (Tableau III)

- Suin : cette station a également été retenue car elle est d'une part aussi éloignée qu'il est possible de l'être des sources de pollution industrielle, d'autre part, très riche du point de vue lichénologique : couverture très importante des roches siliceuses en *Rhizocarpon cf. geographicum*, très nombreuses espèces de *Cladonia* terricoles, dont *Cladonia* du groupe *coccifera* cf. *floerkeana*, *Hypogymnia physodes* fructifiée...

1.1.4. Analyses de lichens se développant en milieu rural afin d'obtenir des points de comparaison

- Villard et quelques stations à l'écart de Montceau-les-Mines.

1.1.5. Examen de l'impact de l'industrie de l'uranium

- Gueugnon : décharge radifère de la COGEMA, qui a rempli une gravière des résidus du traitement de l'uranium (fabrication de « yellow cake »).

Tableau III.

Activités en radium 226 et radium 228 de quelques lichens prélevés sur un site dont le sol est particulièrement riche en radium : horizon de 0 à 8 cm : 205 Bq/kg de 226Ra et 67 Bq/kg de 228Ra (mesuré sur 228Ac). Résultats exprimés en becquerels par kilogramme par rapport à la matière sèche. Ces chiffres peuvent être considérés comme des maxima dans des zones non polluées.

Table III.

Radium 226 and radium 228 in lichens having been sampled on a site with a soil having very high activities of radium : layer from 0 to 8 cm : 205 Bq/kg for 226Ra and 67 Bq/kg (measured on 228Ac) for 228Ra. The results are expressed in becquerel per kilogramme on dry matter. They can be considered as maximal values for non contaminated areas.

ELEMENTS REPRESENTES		226 Ra				228 Ra		228 Th		
ELEMENTS ANALYSES		Ra226	+/-	Pb 214	+/-	Ac 228	+/-	Pb 212	+/-	
ESPECE	date									REMARQUES
<i>Parmelia sulcata</i>	avr-94			65	2,5	6,8	1,9	21,5	8,1	
<i>Lasallia pustulata</i>	sep-93	121	51			<27		14,6	6,3	
<i>L. pustulata</i>	sep-93	< 91				48,5	25	27,1	8,5	
<i>L. pustulata</i>	sep-95	122	76	< 48		29,6	24	30,6	7,6	
<i>L. pustulata</i>	sep-95	91	80	< 44		29,2	20	19,4	7,8	
<i>Parmelia caperata</i>	déc-93			102,9	28	<61		<25,8		thalles < 60 mm
<i>P. caperata</i>	déc-93			146,5	24	<41,6		<18,2		thalles > 120 mm
<i>Cladonia tenuis</i>	fév-94			14,2	5,7	<20,5		<9		

1.2. Techniques d'échantillonnage

A l'exception de certains lichens de Suin, tous les lichens prélevés étaient corticoles, se développant sur des arbres en dehors de massifs forestiers. La spectrométrie gamma exigeant une masse relativement importante, 10 g si possible, de 30 à 100 thalles étaient prélevés dans des conditions homogènes : à une hauteur de 0,7 à 2 mètres, sur des troncs verticaux d'un diamètre minimum de 20 cm. Ces thalles peuvent donc être raisonnablement considérés comme représentatifs d'une population. Les échantillons ont été mouillés avec de l'eau déminéralisée puis décollés ; les débris et restes d'écorces ont été enlevés avant séchage à l'air. Les échantillons secs ont été envoyés dans les laboratoires pour traitement ultérieur.

2. Analyses

Au laboratoire de l'ACRO (Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest), les échantillons ont été déshydratés à 105°, homogénéisés et placés dans une géométrie de comptage identique à celle de la source étalon. Ils ont ensuite été placés dans un détecteur au germanium-lithium de type P avec un temps de comptage de 22 h 30. Les résultats sont exprimés en becquerels par kilogramme de matière sèche avec un intervalle de confiance de 95 %.

Au laboratoire du Service de Radioprotection de l'Université de Bremen, les échantillons déshydratés ont été préalablement incinérés et coulés dans des pastilles de cire avant d'être placés dans un détecteur au germanium hyperpur de type N permettant de mesurer les désintégrations de faible énergie.

3. Les éléments recherchés

Sur les trois familles d'éléments radioactifs naturels actuellement existantes, l'une, celle de l'Uranium 235 est fortement minoritaire.

Les éléments des deux autres familles, c'est à dire de l'Uranium 238 et du Thorium 232 figurent sur le tableau II : leur période (T_{1/2}) figure dans la deuxième colonne et, dans la troisième, est indiquée l'activité spécifique, soit le nombre de becquerels d'un gramme de cet élément : cette dernière indication permet de voir qu'à l'exception des nucléides dits « primordiaux », la masse des éléments est négligeable par rapport à celle des éléments-traces stables souvent étudiés.

Parmi les éléments de ces deux familles, seuls les émetteurs gamma les plus représentatifs ont été analysés : le thorium 234 (représentant l'Uranium 238), le Radium 226 (directement ou à partir du Plomb 214), le Plomb 210, l'actinium 228 (représentant le Radium 228) et le Plomb 212 (représentant le Thorium 228). Le fait que les autres ne sont pas mentionnés ne permet pas de conclure à leur absence.

Certains éléments mesurés ont cependant une période trop courte pour que le résultat soit significatif s'il est pris isolément : ainsi, le Plomb 214, avec T_{1/2} = 26,8 minutes : au moment de l'analyse, il ne représente que le ou les éléments en amont de la chaîne, le Radon 222 (T_{1/2} = 3,8 jours) ou le Radium 226 (T_{1/2} = 1 600 ans), selon le temps qui sépare l'analyse du prélèvement. Le radon se présente cependant sous forme gazeuse et diffuse aisément ; pour cette raison, les échantillons ont été scellés dans la géométrie de comptage pendant au moins 5 périodes de radon pour atteindre un « équilibre » quasi-complet entre le Radium 226, le

Radon 222 et le Plomb 214. Le ^{226}Ra a donc été analysé en exploitant les résultats de comptage du ^{214}Pb .

De même, le résultat de comptage du Thorium 234 est-il considéré comme étant essentiellement représentatif de l'Uranium 238.

Dans la chaîne du ^{232}Th , l'Actinium 228 ($T_{1/2} = 6,1$ h) représente le Radium 228 et le Plomb 212 représente le Thorium 228 ($T_{1/2} = 1,9$ ans) - dans ce dernier cas cependant, le ^{212}Pb peut représenter aussi pour partie le ^{228}Ra si un temps suffisamment long s'est écoulé entre le dépôt de l'élément sur le thalle et l'analyse.

Les éléments examinés ici sont donc les suivants :

- L'Uranium 238 : nucléide primordial.
- Le Radium 226 : un des radioéléments les plus étudiés.
- Le Plomb 210 : très problématique par sa radiotoxicité.
- Le Radium 228.
- Le Thorium 228 : lui aussi très problématique par sa radiotoxicité.

Résultats

Pour *Parmelia sulcata*, les teneurs (exprimées par rapport à la matière sèche) sont les suivantes :

- Uranium 238 : de $< 1,9$ à 91 Bq/Kg ;
- Radium 226 : de $< 1,3$ à 114 Bq/Kg ;
- Plomb 210 : de 90 à 802 Bq/Kg ;
- Radium 228 mesuré sur l'Actinium 228 : de $< 1,4$ à 39 Bq/Kg ;
- Les résultats mesurés à partir du Plomb 212 donnent une fourchette plus grande : $1,1$ à 77 Bq/Kg, faisant penser à la présence de Thorium 228 s'ajoutant au ^{228}Ra .

Pour *Xanthoria parietina*, les teneurs sont les suivantes :

- Uranium 238 : de $< 6,8$ à 92 Bq/Kg ;
- Radium 226 : de $7,7$ à 388 Bq/Kg ;
- Plomb 210 : de 96 à 400 Bq/Kg ;
- Radium 228 mesuré sur l'Actinium 228 : de $< 3,4$ à $86,6$;
- Thorium 228 : $2,8$ à 67 Bq/kg en mesurant le pic de ^{212}Pb .

Concernant la zone rurale à très forte radioactivité naturelle, le lichen terricole *Cladonia tenuis* présente les activités les plus faibles : $14,2$ Bq/Kg de Radium 226 ($< 20,5$ Bq/Kg de Radium 228). *Parmelia caperata* est le lichen saxicole foliacé avec la plus forte activité : de $102,9$ à $146,5$ Bq/Kg de Radium 226 (< 61 et $< 41,6$ pour le radium 228). *Lasallia pustulata* va jusqu'à une activité de 121 Bq/Kg de Radium 226 et $48,5$ de Radium 228. *Parmelia sulcata* présente une acti-

tivité de 62 Bq/Kg de Radium 226 et $6,8$ Bq/Kg de Radium 228.

Les résultats détaillés figurent sur les tableaux suivants :

III : Fond naturel de quelques lichens d'une station avec une forte radioactivité naturelle.

IV : L'Uranium, le Radium et le Plomb 210 de *Xanthoria parietina* de différents biotopes.

V : Comparaison de la présence de Plomb 210 et de plomb stable.

VII : Ensemble des résultats.

Discussion

1. Constats

Un certain nombre de constats simples peuvent être faits en examinant les tableaux :

Le lieu de prélèvement a une influence déterminante sur les activités détectées dans les lichens, rendant des statistiques générales difficiles.

A la lecture du tableau IV, cela peut se constater sur *Xanthoria parietina* : l'activité en ^{226}Ra est plus forte dans un site industriel classique qu'en zone rurale ou en zone côtière ; elle est encore beaucoup plus forte aux abords immédiats de la décharge radifère de Gueugnon ; sur ce dernier site, tous les autres éléments sont aussi nettement plus abondants : ^{238}U , ^{228}Ra et, de façon moins spectaculaire, ^{210}Pb .

Le même genre de constat peut être fait en examinant les résultats chez *Parmelia sulcata* (voir tableau général : VII) : à Gueugnon, à proximité de la décharge de résidus de traitement de l'Uranium, la présence d'Uranium 238, de Radium 226 et de Radium 228 est supérieure d'un facteur 10 à ce que l'on trouve dans des zones non polluées ; par contre le Plomb 210, s'il est un peu plus abondant que dans les zones non polluées en plaine l'est moins que dans des échantillons situés en zone industrielle (centrale thermique de Montceau-les-Mines) ou en altitude.

Au vu de l'ensemble des résultats, il semblerait que *Xanthoria parietina* ait un plus grand pouvoir d'incorporation du Radium que *Parmelia sulcata*. Le fait qu'à Gueugnon il en contienne trois fois plus ne doit cependant pas donner lieu à des conclusions hâtives : les stations de prélèvements étaient distantes d'une centaine de mètres et un passage ultérieur avec un compteur de type Geiger-Müller a permis de se rendre compte que le sol de la station où se développait *X. parietina* était sensiblement plus contaminé (il est extérieur au périmètre réglementaire de la décharge et l'exploitant n'a donc pas jugé opportun de le décontaminer). Le comportement des deux espèces étudiées reste sensiblement comparable pour les autres radioéléments, même si

Tableau IV.

Exemples d'activité des éléments étudiés dans quelques échantillons de *Xanthoria parietina* prélevés dans des biotopes spécifiques différents : une zone rurale proche de l'autoroute, une zone côtière, une zone industrielle classique en plaine et les abords de la décharge radifère de Gueugnon.

Table IV.

Some examples of the activities of the elements under study in samples of *Xanthoria parietina* collected in different specific biotopes: a rural area near the motorway, a coastal area, a traditional industrial zone in a valley and the radiferous tip of Gueugnon.

		ELEMENTS RECHERCHES:								
		Uranium 238		Radium 226		Plomb 210		Thorium 228		
		Th234	+/-	Pb 214	+/-	Pb210	+/-	Pb 212	+/-	
		(éléments utilisés pour analyse)								
date	lieu									REMARQUES
nov-94	Mâcon Sud	<6,8		7,7	2,4	118	8	2,8	1,8	Zone rurale + autoroute
sep-92	Gravelines	-		<15,1		-		17	5,1	Zone côtière
sep-92	Gravelines	-		21	11,6	-		<31,4		*
aoû-93	Chalon	-		217	38,6	-		<25,8		Site industriel classique en plaine
oct-93	Chalon	-		150,4	25	-		<15,3		
aoû-93	Chalon	-		103	21	-		16,9	8,5	
aoû-93	Chalon	-		113,7	42,8	-		<45,8		
jun-95	St Remy	<20,5		<4,4		96	8	<3,6		
aoû-95	Chalon	-		18,3	1,8	198	14	7	1,2	
aoû-95	Chalon	-		36,4	3,2	143	15	17	2,5	
fév-94	Gueugnon	92	24	388	17	400	44	67	10,4	Décharge radifère

nous avons constaté une plus grande cohérence dans les résultats obtenus sur *Parmelia sulcata* (voir les écarts des résultats sur *Xanthoria parietina* à Chalon-sur-Saône).

2. Différences interspécifiques

Dans l'ensemble, la faculté d'accumulation des diverses espèces ayant fait l'objet d'analyses s'inscrit dans un même ordre de grandeur, même si les espèces à croissance plus lente, *Parmelia caperata* (corticole) et *Lasallia pustulata* (saxicole) ont des activités plus élevées. On est cependant loin des différences de comportement que présentent les champignons supérieurs vis-à-vis de certains métaux lourds ou radioéléments.

3. Circulation automobile

Il aurait été concevable que la circulation automobile ait une influence sur la teneur des lichens en éléments naturels des familles de l'Uranium et du Thorium : le pétrole et ses dérivés contiennent de tels éléments qui se retrouveront dans l'essence, même sans plomb ; de plus, le ^{210}Pb est logiquement associé au plomb total ajouté à l'essence (depuis 1981, en France, l'essence avec plomb en contient environ 0,4 gramme par litre). Il y a une corrélation directe entre la circulation automobile et la présence de plomb dans les lichens (pour plus de détails, voir DERUELLE 1992). En examinant le tableau V, il est clair qu'il n'y a pas de corrélation

entre l'abondance de plomb stable et de Plomb 210. L'une des stations où le taux de Plomb 210 était le plus bas (118 Bq/Kg) est Mâcon Sud, près de la sortie d'Autoroute.

4. La Centrale thermique de Montceau-les-Mines

La centrale thermique brûlant un charbon riche en éléments associés à l'uranium et au thorium peut être suivie de façon très nette par l'uranium et le radium : voir sur la figure 1 les relevés dans les deux directions correspondant aux vents dominants : à 1 km de la Centrale, en centre ville, l'activité des lichens en ^{238}U est de 9,1 Bq/Kg, elle reste sensiblement égale à 2,5 km (8,7 Bq/Kg) pour tomber à 4,8 Bq/Kg à 4,5 km ; au-delà, elle est inférieure au seuil de détection. Si cette activité remonte à 6,2 Bq/Kg à 15 km, cela est probablement dû au site urbain caractérisé par des activités industrielles passées et non à la Centrale thermique. Les rejets de Radium 226 de la Centrale suivent à peu près la même trajectoire : à noter cependant une activité un peu plus élevée à 2,5 km qu'à 1 km, phénomène peut-être dû à « l'effet parapluie » (les émissions ne retombent pas au pied de la source) ; ces valeurs restent cependant comparables et sont environ 4 fois plus élevées qu'à 4,5 km. La trajectoire semble comparable pour le ^{228}Ra . La présence sensiblement accrue d'Uranium et de Radium autour de la Centrale se limite donc à un rayon inférieur à 4,5 km.

Tableau V.
Comparaison des activités en Plomb 210, exprimées en becquerel par kilogramme de matière sèche et les teneurs en plomb stable, exprimées en milligramme par kilogramme (ou ppm) de quelques lichens ; aucune corrélation n'a pu être établie.

Table V.
Comparison of the activities of lead 210, given in becquerel per kilogramme of dry matter and the contents of stable lead, given in milligramme per kilogramme on some lichens ; there appears to be no correlation.

ESPECE	date	lieu	Pb210	Plomb stable
<i>X parietina</i>	nov-94	Mâcon Sud	118	51,5
<i>X parietina</i>	jun-95	Chalon/Quais	96	323
<i>X parietina</i>	aoû-95	Chalon/Roseaie	198	37
<i>X parietina</i>	aoû-95	Chalon/Roseaie	143	id.
<i>P sulcata</i>	jan-94	Montceau	204	73,8
<i>P sulcata</i>	jan-94	Montceau	246	37
<i>P sulcata</i>	jan-94	Montceau	299	90
<i>P sulcata</i>	jan-94	Montceau	239	105
<i>P sulcata</i>	mai-95	Autun	574	89
<i>P sulcata</i>	mai-95	Montchanin	291	92

Nous avons constaté qu'il n'en va pas de même pour le Plomb 210 : l'activité détectée est certes un peu plus élevée en centre ville, à 1 km du lieu de combustion (299Bq/Kg) que dans les stations entourant la ville (entre 90 Bq/Kg et 246 Bq/Kg) mais comparable à celle relevée à Montchanin (291 Bq/kg). Cela s'explique par la dualité du phénomène de dépôt du ^{210}Pb dans l'environnement : les différents éléments de la chaîne de l'Uranium présents dans le charbon sont supposés en équilibre. Lors de la combustion, le ^{210}Pb présent tel quel dans le charbon reste pour partie dans les cendres et se disperse pour partie dans l'environnement, en suivant la même trajectoire que le plomb stable : il n'est donc pas dispersé à une grande distance. Par contre, dans une situation d'"équilibre", le charbon contient également du Radon 222, dans les mêmes proportions que les autres éléments de la chaîne ; lors de la combustion, ce gaz est libéré en totalité dans l'environnement et il suivra les masses d'air dans lesquelles il se trouve ; il ne passera à l'état particulaire que peu à peu, à mesure qu'il se dégrade (sa période est de 3,8 jours) et le Plomb 210 résultant de cette dégradation se déposera beaucoup plus loin, en suivant probablement la dynamique de dépôt du Plomb 210 ayant d'autres origines : d'après HILL (1965), le temps de résidence moyen des aérosols dans la troposphère serait de 20 à 30 jours.

5. Influence de l'altitude

La proximité de la centrale est directement corrélée aux teneurs en Uranium et en Radium des lichens, sans que l'altitude n'ait d'influence : celle-ci, signalée par d'autres auteurs (KWAPU-LINSKI & al. 1985) ne se manifeste de façon sensible qu'à partir d'une altitude de 750 mètres environ alors que dans le cas présent les stations se trouvaient à une altitude entre 280 et

580 mètres. Par contre, pour le Thorium 228, il semblerait que les lichens en contiennent plus en altitude : dans le transect Sud-Ouest/Nord-Est à partir de Montceau-les-Mines, les teneurs diminuent régulièrement pour tomber en dessous du seuil de détection ($< 1,1$) à 15 km. Ce transect suit le canal du centre et il n'y a donc pas de changement d'altitude. Par contre, le transect Nord-Ouest/Sud-Est passe par deux sommets : le Mont Saint-Vincent à 580 mètres et le Culle à 440 mètres, respectivement distants de 10 et de 15 km de la centrale thermique de Montceau-les-Mines. Après avoir diminuées fortement entre le centre ville (10,3 Bq/kg) et la station située à 5 km (2,7 Bq/kg), les teneurs augmentent à nouveau au Mont-Saint-Vincent (5,6 Bq/kg) et au Culle (4,4 Bq/kg).

6. Zones industrielles anciennes

Les zones avec une implantation industrielle ancienne sont caractérisées par une présence accrue de radium : on peut le constater à Chalon-sur-Saône où a longtemps fonctionné une centrale thermique et à Montchanin, site industriel ancien. Même lorsque les activités industrielles en question ont cessé depuis plusieurs années, il semble que le radium reste présent dans la biosphère, peut-être dans un cycle avec des remises en circulation.

7. Problèmes particuliers

7.1. Le Plomb 210

Nous avons vu ci-dessus que le Plomb 210 émis par un foyer de combustion ne suivait pas la même dynamique de dépôts que les autres éléments radioactifs : il est susceptible d'être transporté sur de grandes distances et il contribue au bilan total de Plomb 210 dans la biosphère.

re en se déposant avec le ^{210}Pb ayant d'autres origines.

HILL (1965) et JAWOROWSKI (1966) ont fourni des informations détaillées sur cet élément radioactif : en 1956, les dépôts annuels de ^{210}Pb étaient en moyenne de 1,7 millicurie par kilomètre carré (1 Curie = $3,7 \times 10^{10}$ becquerel). L'eau de pluie avait une activité de 0,01 à 0,05 picocurie par litre (0,37 à 1,85 millibecquerel/litre).

Le taux moyen d'émanation de Radon 222 de la croûte terrestre serait de $3,2 \times 10^4$ pCi/m²/jour. En prenant en compte la partie de la croûte terrestre non recouverte de glaciers ou de neiges éternelles, l'auteur arrive à une production de 3,6 mégacurie de ^{222}Rn par jour, ce qui correspond à la production de 0,62 mégacurie de ^{210}Pb par an. JAWOROWSKI a cependant constaté qu'entre 1952 et 1959, la quantité de ^{210}Pb a été multipliée par 10 dans les glaciers ; il a constaté parallèlement une augmentation entre 1952 et 1965 dans les bois des chevreuils et dans les lichens (*Cladonia* div sp.). Il considère que les combustibles fossiles peuvent certes occasionner des augmentations ponctuelles de la présence de ^{210}Pb dans l'environnement, mais ne sauraient expliquer une croissance au niveau mondial. Le Plomb 210 lié au plomb stable utilisé dans les carburants ne saurait non plus expliquer ce phénomène : en partant de la supposition qu'un gramme de plomb total contient 12 picocurie (= 64 millibecquerel) de Plomb 210, l'utilisation du plomb tétraéthyl dans les carburants n'aurait occasionné qu'un apport négligeable. Au terme de son raisonnement, JAWOROWSKI arrive à la conclusion qu'en 1962, 60 % du ^{210}Pb avait pour origine les explosions atmosphériques. HILL (1965) avait déjà évoqué le fait sans citer de chiffres. En 1978, ROBBINS estimait que ces essais nucléaires atmosphériques avaient relâché dans l'atmosphère un total de 1,4 mégacurie de cet élément.

Cela s'explique par l'activation du plomb stable : ^{208}Pb (2n, gamma) $\rightarrow$ ^{210}Pb .

PERSSON (1970) quant à lui, a comparé les concentrations de ^{210}Pb dans *Cetraria islandica* prélevés pendant ses recherches et « avant 1900 », respectivement 1295 et 544 Bq/Kg, sans proposer de conclusion quant à cette augmentation.

Aujourd'hui il est difficile d'évaluer la proportion de Plomb 210 d'origine militaire que l'on pourrait retrouver dans les lichens. 65 % de ce plomb « militaire » a disparu aujourd'hui. Même si certains pays ont continué des essais atmosphériques après 1962, ces essais ont été moins nombreux. On peut donc supposer qu'un peu plus de 0,6 mégacurie ayant cette origine existe encore dans notre biosphère. La période biologique — et donc la période effective — du Plomb 210 dans les lichens est sans aucun doute nettement plus brève : PERSSON (1970) évalue la

période effective du Plomb 210 dans les lichens à 7 ± 2 ans, mais en France, il est probable que cette période effective * soit moins longue que dans les pays nordiques.

Ce ^{210}Pb ayant pour origine les essais atmosphériques se trouve donc probablement en grande partie dans le sol et les sédiments : il faut en tenir compte lors de l'analyse de champignons mais le problème ne se poserait pour les lichens foliacés que si l'on se trouvait en présence de phénomènes de remise en circulation. Pour l'instant, nous dirons simplement que le Plomb 210 a plusieurs origines :

- Le cycle naturel ;
- Des origines industrielles non nucléaires (combustions, engrais) ;
- Une origine nucléaire militaire ;
- Une origine nucléaire à finalité mixte : extraction et traitement de l'uranium.

7.2. Le Thorium 228

Cet élément (T 1/2 : 1,9 ans) est celui qui présente la plus forte radiotoxicité par inhalation (voir tableau VI) : s'il provient d'une activité de type nucléaire, la limite annuelle d'incorporation (LAI) pour une personne du public est de 40 ou 60 becquerel selon la composition chimique. Encore cette limite ne s'applique-t-elle que lorsqu'il n'y a aucun autre radioélément présent. Les concentrations que l'on est susceptible de trouver dans les lichens en zone urbaine ou dans les zones à sol thorifère sont donc importantes, d'autant plus que ce Thorium a été incorporé dans les thalles après un dépôt atmosphérique. Il sera donc un jour nécessaire d'étudier la concentration de cet élément dans l'air.

8. Aspects de santé publique

Pour terminer, il semble opportun de s'attarder sur l'aspect radioprotection du problème dans son ensemble : les éléments descendants de l'Uranium et du Thorium sont presque tous classés parmi les éléments radioactifs de « très forte radiotoxicité » (Directive Européenne du 3 septembre 1984). Ces éléments ne sont pas pris en compte lorsque leur présence a une origine naturelle mais, lorsqu'ils ont pour origine l'industrie nucléaire, les Limites Annuelles d'Incorporation (LAI) sont très basses :

A titre d'exemple, ces LAI pour les personnes du public sont pour le Radium 226 : 2 000 Bq par inhalation et 7 000 Bq par ingestion ;

Pour le Plomb 210, les LAI sont même de 900 Bq par inhalation et de 2 000 par ingestion.

* la période effective se calcule selon la formule :
$$\frac{1}{T_{1/2} \text{ physique} + T_{1/2} \text{ biologique}}$$

$$T_{1/2} \text{ physique} \times T_{1/2} \text{ biologique}$$

Tableau VI.

Comparaison entre les Limites Annuelles d'Incorporation pour les personnes du public, telles que résultant de la réglementation européenne en vigueur et les activités décelées chez les lichens : nous avons pris arbitrairement la moyenne des résultats sur *Parmelia sulcata* en excluant néanmoins l'échantillon prélevé près de la décharge radifère de Gueugnon.

NB : ces limites annuelles pourraient prochainement être divisées par 5 pour s'aligner sur les recommandations de la CIPR.

Table VI.

Comparison of the Annual Limits of Intake for the general public, as in the present European legislation and the activities found in lichens : we chose arbitrarily to take the mean of the results on *Parmelia sulcata*, excluding the sample from the radiferous tip of Gueugnon.

NB : the limits of intake may be revised soon and divided by 5 so as to comply with the recommendations of the ICRP.

		LIMITE ANNUELLE D'INCORPORATION				
ELEMENT	ACTIVITE LICHENS	Par inhalation			Par ingestion	
	moyenne <i>P. sulcata</i>					
		soluble	peu soluble	très insoluble	soluble	peu soluble
Uranium 238	14,15	5000	3000	2000	50000	800000
Radium 226	17,45		2000			7000
Plomb 210	338		900			2000
Radium 228	4,16		40000			9000
		oxydes	autres composés			
Thorium 228	6	60	40			20000

Rappelons que pour le Thorium 228, la limite annuelle d'incorporation par inhalation est de 40 ou de 60 Bq selon sa forme chimique !

De plus ces LAI seront prochainement révisées à la baisse : elles devraient être divisées par cinq pour aligner la législation européenne sur les recommandations de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR).

Les LAI des éléments analysés figurent sur le tableau VI, à côté des activités mesurées sur *Parmelia sulcata* (moyenne des résultats supérieurs au seuil de détection, à l'exclusion des échantillons prélevés aux abords de la décharge radifère de Gueugnon).

Lorsqu'on est en présence d'un mélange de radionucléides, ces limites doivent être pondérées en conséquence. Lorsqu'un radioélément provient pour partie du cycle naturel et pour partie d'une activité liée à l'industrie nucléaire et que les proportions ne sont pas connues, il semblerait conforme à l'esprit des règles de radioprotection de tenir compte de la totalité de la radioactivité présente. L'application de ce principe nécessitera cependant encore une évolution des esprits.

Quoiqu'il en soit, l'utilisation des lichens peut s'avérer intéressante dans ce domaine dans la mesure où les parallèles entre leur physiologie et la physiologie humaine sont de plus en plus souvent invoqués ; ainsi la période effective dans les lichens et dans certains tissus pourrait-elle être comparable : depuis 1980, la Commission Internationale de Protection Radiologique (ICRP 30, 1980) évalue la période effective du plomb 210 dans l'organisme humain en trois fractions : 0,6, 0,2 et 0,2 ayant respectivement des périodes biologiques de 12, 180 et 10 000 jours ; il a été question plus haut d'une période effective de 7 ans ou un peu moins pour les lichens. Ainsi,

des personnes vivant par exemple à Montceaux-les-Mines, dans un environnement où les lichens présentent une activité de 17,2 Bq/Kg de ²²⁶Ra et une activité de 10,3 Bq/Kg de ²²⁸Th, sont-elles probablement trois fois plus exposées au Radium 226 et cinq fois plus exposées au Thorium 228 que celles vivant à 10 kilomètres au Nord-Est, où ces mêmes éléments présentent respectivement des activités de 5,8 et 2 Bq/Kg.

9. Suivi dans le temps des temps des dépôts de ²¹⁰Pb et de ²²⁸Th

Pour ces deux éléments, il serait nécessaire d'étudier non seulement leur répartition spatiale, mais aussi l'évolution de leur présence dans le temps. On pourrait travailler avec la période effective de ces éléments dans les thalles des lichens : pour que la notion de période effective soit fiable, il faut supposer égales les conditions géographiques et climatiques ; en supposant aussi un taux de dépôt constant, ce qui serait la situation « naturelle », on arriverait à l'équilibre au bout d'un certain temps : les dépôts venant s'ajouter sont alors compensés par l'élimination biologique combinée à la dégradation physique des éléments en question. Un équilibre parfait serait atteint au bout de 10 périodes effectives, mais un équilibre raisonnable de plus de 90 % s'établit déjà au bout de 4 périodes. Dans le cas du Plomb 210, si l'on suppose une période effective maximale de 7 ans, cet équilibre serait supposé réalisé sur tout lichen de plus de 28 ans. Dans le cas du Thorium 228 cet équilibre serait réputé établi, dans le pire des cas (lorsque $T_{1/2_{phys}} = T_{1/2_{eff}}$) sur des thalles de plus de 4 ans. En procédant à des analyses comparatives dans le temps et en veillant à la fiabilité de

Tableau VII.

Récapitulatif des résultats, regroupés par origine géographique ou type de biotope et exprimés en Bq/kg de matière sèche ; seuls les éléments analysés — et non les éléments « représentés » — figurent sur ce tableau.

Table VII.

Complete list of results grouped according to the biotope or to geographic criteria and given in Bq/kg dry matter ; the elements presented here are the analysed elements and not the « represented » ones.

ELEMENTS ANALYSES														
Espèce	date	lieu	Th234	+/-	Ra226	+/-	Pb 214	+/-	Pb210	+/-	Ac 228	+/-	Pb 212	+/-
Station en plaine proche de la sortie d'autoroute														
X parietina	oct-94	Mâcon Sud	<6,8				7,7	2,4	118	8	<3,4		2,8	2
Ville de Montceau avec sa centrale thermique au charbon et témoins en zone rurale proche														
P sulcata	jan-94	Montceau	8,7	1			23,4	0,8	204	3	7,2	1	6,9	1
P sulcata	jan-94	Montceau	4,8	2			13,3	1,2	246	5	3,4	1	1,8	1
P sulcata	jan-94	Montceau	9,1	1			17,2	0,9	299	4	6,1	1	10,3	1
P sulcata	jan-94	Montceau	<1,9				5,8	0,7	239	6	2,4	1	2	1
P sulcata	fév-95	Le Culle	<8,8				6,3	0,8	533	5	3,3	1	4,4	1
P sulcata	fév-95	Les Gris	<30,1				<4,9		90	6	<5,2		2,7	2
P sulcata	mai-94	Mt St Vincent	<18,3				<3,6		802	24	<3,2		5,6	2
L pustulata	fév-95	Mt St Vincent	<9,9				<1,5		430	4	<1,5		<1,3	
Station aux abords de la décharge radifère														
P sulcata	fév-94	Gueugnon	91	9			114	5,3	241	17	39	5	77	5
X parietina	fév-94	Gueugnon	92	24			388	17	400	44	<23		67	10
Agglomération chalonaise, région industrielle classique et espace vert (Roseaie)														
X parietina	aoû-93	St Remy/quai					217	39			86,6	46	<25,8	
X parietina	oct-93	Chalon					150,4	25			<36		<15,3	
X parietina	aoû-93	Chalon Roseaie					103	21			<40		16,9	9
X parietina	aoû-93	Chalon Roseaie					113,7	43			<108,5		<45,8	
X parietina	jun-95	St Remy/quai	<20,5				<4,4		96	8			<3,6	
X parietina	aoû-95	ChalonRoseaie												
X parietina	aoû-95	ChalonRoseaie												
Zone rurale du Charollais avec un sol riche en éléments radioactifs naturels														
Sol 0à8 cm	déc-93	Suin sommet			205	25					67,4	9	63,1	6
Sol 8/16 cm	déc-93	Suin sommet			357	36					99,2	11		
P sulcata	avr-94	Suin	<6,6				65	2,5	230	8	6,8	2	21,5	8
L pustulata	sep-93	Suin			121						<27		14,6	6
L pustulata	sep-93	Suin			<91						48,5	25	27,1	9
L pustulata	sep-95	Suin			122	76	<48				29,6	24	30,6	8
L pustulata	sep-95	Suin			91	80	<44				29,2	20	19,4	8
P caperata	déc-93	Suin					102,9	28			<61		<25,8	
P caperata	déc-93	Suin			147	24					<41,6		<18,2	
Cladonia tenuis		Suin, fev 94					14,2	5,7			<20,5		<9	
Zone rurale à 2 km de la ville														
P sulcata	fév-95	Cluny	<8,6				<1,6		389	10	<1,5		<1,4	
Zone industrielle ancienne proche du bassin minier de Montceau														
P sulcata	jun-95	Le Creusot	<51				4	0,9	156	4	1,5	1	3	1
P sulcata	jun-95	Montchanin	<6,2		<12,6		<1,3		290,8	14	2,6	1	<1,1	
Région avec activité industrielle ancienne et sol riche en éléments radioactifs naturels														
P sulcata	jun-95	Autun	34	22			4,6	0,8	574	6	<1,4		2	1
Zone industrielle côtière														
X. parietina	sep-92	Gravelines					<15,1						17	5
X. parietina	sep-92	Gravelines					21	12					<31,4	

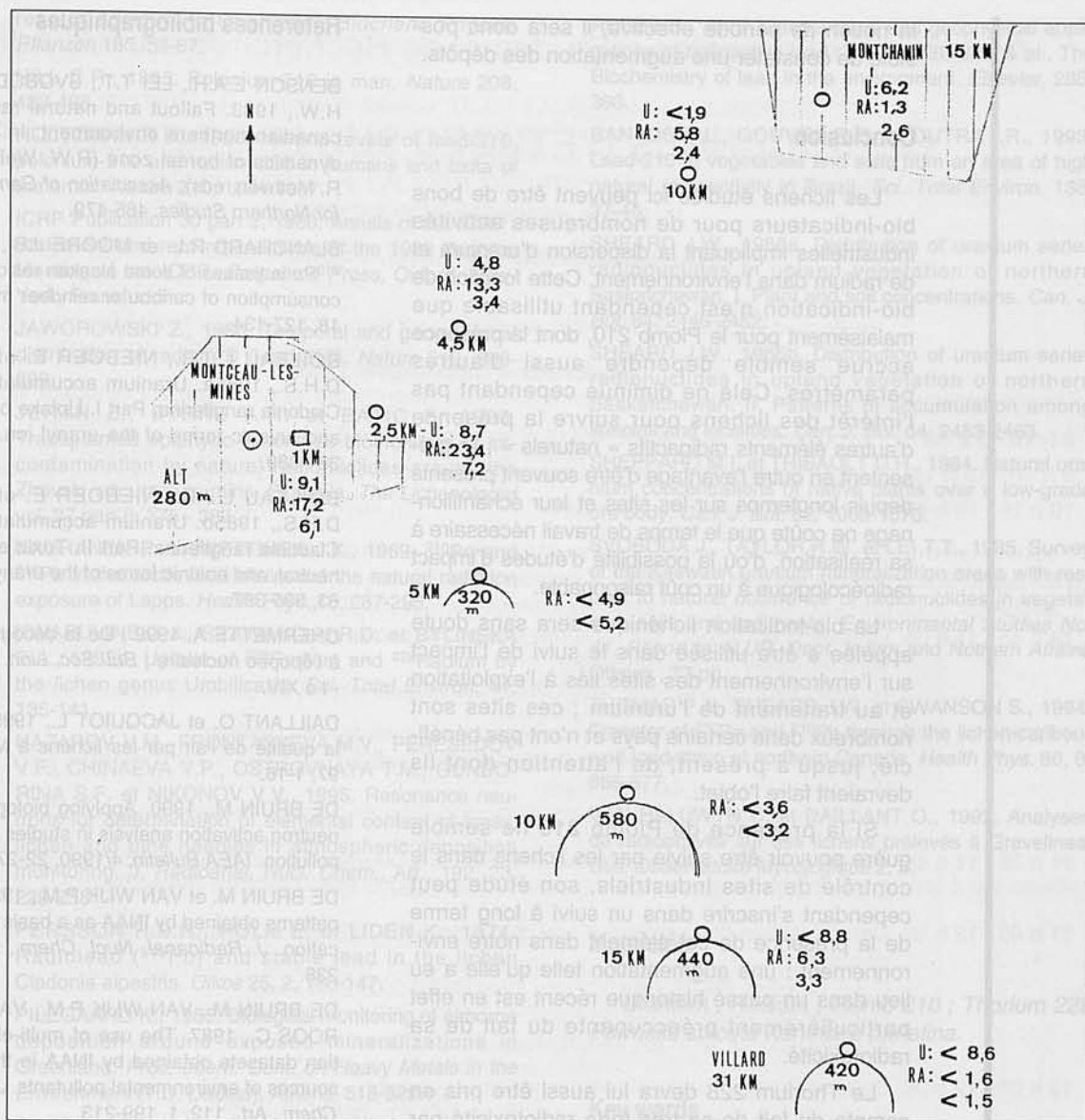


Figure 1.

Activités en uranium 238, en radium 226 et en radium 228 d'échantillons de *Parmelia sulcata* prélevés selon deux axes et à des distances croissantes de la centrale thermique de Montceau-les-Mines.

Les résultats sont exprimés en becquerel par kilogramme de matière sèche.

Signes : U représente l'uranium 238, RA est suivi de 2 chiffres : le premier pour le radium 226, le second pour le radium 228.

Lorsque l'activité de l'uranium 238 est inférieure au seuil de détection, celui-ci n'est indiqué que lorsque est inférieure aux activités décelées dans l'agglomération de Montceau.

Les zones urbaines et industrielles sont hachurées ; Les distances par rapport à la centrale thermique sont indiquées et sont à l'échelle jusqu'à un éloignement de 10 km. L'altitude des points de prélèvement est indiquée pour l'axe NW/SE ; les stations de l'autre axe, de Montceau à Montchanin, sont toutes sensiblement à la même altitude.

Figure 1.

Activities of uranium 238, radium 226 and radium 228 of *Parmelia sulcata* sampled along two axes and at increasing distances from the coal-fired power plant of Montceau-les-Mines. The results are presented in becquerel per kilogramme of dry matter.

Symbols : U stands for uranium 238. RA is followed by two figures : the first for radium 226, the second for radium 228

When the activity of uranium 238 is below the detection limit, it is indicated only if this limit is inferior to the activity measured in Montceau.

The urban and industrial areas are shaded ; the distances from the power plant are on scale up to 10 km ; the altitude for the sites of the NW/SE axis are also indicated, whereas the altitude of the other axis is nearly constant.

la notion de période effective, il sera donc possible de constater une augmentation des dépôts.

Conclusion

Les lichens étudiés ici peuvent être de bons bio-indicateurs pour de nombreuses activités industrielles impliquant la dispersion d'uranium et de radium dans l'environnement. Cette fonction de bio-indication n'est cependant utilisable que malaisément pour le Plomb 210, dont la présence accrue semble dépendre aussi d'autres paramètres. Cela ne diminue cependant pas l'intérêt des lichens pour suivre la présence d'autres éléments radioactifs « naturels » ; ils présentent en outre l'avantage d'être souvent présents depuis longtemps sur les sites et leur échantillonnage ne coûte que le temps de travail nécessaire à sa réalisation, d'où la possibilité d'études d'impact radioécologique à un coût raisonnable.

La bio-indication lichénique sera sans doute appelée à être utilisée dans le suivi de l'impact sur l'environnement des sites liés à l'exploitation et au traitement de l'uranium ; ces sites sont nombreux dans certains pays et n'ont pas bénéficié, jusqu'à présent, de l'attention dont ils devraient faire l'objet.

Si la présence de Plomb 210 ne semble guère pouvoir être suivie par les lichens dans le contrôle de sites industriels, son étude peut cependant s'inscrire dans un suivi à long terme de la présence de cet élément dans notre environnement : une augmentation telle qu'elle a eu lieu dans un passé historique récent est en effet particulièrement préoccupante du fait de sa radiotoxicité.

Le Thorium 228 devra lui aussi être pris en compte du fait de sa très forte radiotoxicité par inhalation.

De manière plus générale, la présence accrue des éléments radioactifs naturels dans la biosphère devrait inciter à la réflexion et il convient de s'interroger sur le bien fondé de la réglementation actuelle qui ne les prend en compte que lorsqu'ils proviennent d'une activité liée à l'industrie nucléaire et non pas lorsqu'ils ont pour origine une activité industrielle quelle qu'elle soit.

Remerciements

Parmi les nombreuses personnes ayant apporté leur aide, les auteurs souhaitent remercier particulièrement MM. Werner HERZER (Université de BREMEN) et Gilbert PIGREE (ACRO) pour la réalisation des analyses et Mlles Cécile GEUIDAN et Laurence ROUSSEL (Observatoire mycologique) ainsi que M. André BARBIN (Société d'Etude du Milieu Naturel en Mâconnais) pour les prélèvements.

Références bibliographiques

- BENSON E.A.H., LEI T.T., SVOBODA J. et TAYLOR H.W., 1983. Fallout and natural radioactivity in the canadian northern environment. In : Resources and dynamics of boreal zone (R.W. Wein, R.R. Riewe et R. Methven, eds), *Association of Canadian Universities for Northern Studies*, 465-479.
- BLANCHARD R.L. et MOORE J.B., 1970. ^{210}Pb and ^{210}Po in tissues of some alaskan residents as related to consumption of caribou or reindeer meat. *Health Phys.* 18, 127-134.
- BOILEAU L.J.R., NIEBOER E. et RICHARDSON D.H.S., 1985a. Uranium accumulation in the lichen *Cladonia rangiferina*. Part I. Uptake of cationic, neutral, and anionic forms of the uranyl ion. *Can. J. Bot.* 63, 384-389.
- BOILEAU L.J.R., NIEBOER E. et RICHARDSON D.H.S., 1985b. Uranium accumulation in the lichen *Cladonia rangiferina*. Part II. Toxic effects of cationic, neutral, and anionic forms of the uranyl ion. *Can. J. Bot.* 63, 390-397.
- CHERMETTE A. 1992 ; De la découverte de l'autunite à l'épopée nucléaire ; *Bul. Soc. Linn. Lyon* 1992 T 61/2 - I à XIV.
- DAILLANT O. et JACQUIOT L., 1995. Observation de la qualité de l'air par les lichens à Mâcon. *Terre Vive* 97, 1-16.
- DE BRUIN M., 1990. Applying biological monitors and neutron activation analysis in studies of heavy-metal air pollution. *IAEA Bulletin*, 4/1990, 22-27.
- DE BRUIN M. et VAN WIJK P.M., 1988. Trace-element patterns obtained by INAA as a basis for source identification. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Art.*, 123, 1, 227-238.
- DE BRUIN M., VAN WIJK P.M., VAN ASSEMA R. et ROOS C., 1987. The use of multi-element concentration datasets obtained by INAA in the identification of sources of environmental pollutants. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Art.*, 112, 1, 199-213.
- DERUELLE S., 1992. Accumulation du plomb par les lichens. *Bull. Soc. Bot. Fr.*, 139 Actual Bot. (1), 99 - 109.
- ECKL P., TÜRK R. et HOFMANN W., 1984. Natural and man-made radionuclide concentrations in lichens at several locations in Austria. *Nord. J. Bot.* 4, 521-524.
- ECKL P., HOFMANN W. et TÜRK R., 1986. Uptake of natural and man-made radionuclides by lichens and mushrooms. *Radiat. Environ. Biophys.* 25, 43-54.
- ELLIS K.M. et SMITH J.N., 1987. Dynamic model for radionuclide uptake in lichen. *J. Environ. Radioact.* 5, 185-208.
- ERDMAN J.A. et GOUGH L.P., 1977. Variation in the element content of *Parmelia chlorochroa* from the Powder River Basin of Wyoming and Montana. *Bryol.* 80, 292-303.
- GOUGH L.P. et ERDMAN J.A., 1977. Influence of a coal-fired powerplant on the element content of *Parmelia chlorochroa*. *Bryol.* 80, 492-501.
- HEINRICH G., MÜLLER H.J., OSWALD K. et GRIES A., 1989. Natural and artificial radionuclides in selected styrian soils and plants before and after the

reactor accident in Chernobyl. *Biochem. Physiol. Pflanzen* 185, 55-67.

HILL C.R., 1965. Polonium-210 in man. *Nature* 208, 423-428.

HOLTZMAN R.B., 1966. Natural levels of lead-210, polonium-210 and radium-226 in humans and biota of the arctic. *Nature* 210, 1094-1097.

ICRP Publication 30 part 2, 1980. Annals of the ICRP : Statement and recommendations of the 1980 Brighton Meeting of the ICRP. Pergamon Press, Oxford, New-York, Frankfurt.

JAWOROWSKI Z., 1966. Temporal and geographical distribution of radium D (lead-210). *Nature* 212, 886-889.

JERAN Z., BYRNE A.R. et BATIC F. 1995. Transplanted epiphytic lichens as biomonitors of air-contamination by natural radionuclides around the Zirovski vrh uranium mine, Slovenia. *The Lichenologist* vol. 27 part 5, 375 - 387.

KAURANEN P. et MIETTINEN J.K., 1969. ^{210}Po and ^{210}Pb in the arctic food chain and the natural radiation exposure of Lapps. *Health Phys.* 16, 287-295.

KWAPULINSKI J., SEAWARD M.R.D. et BYLINSKA E.A., 1985b. Uptake of $^{226}\text{Radium}$ and $^{228}\text{Radium}$ by the lichen genus *Umbilicaria*. *Sci. Total Environ.* 41, 135-141.

NAZAROV V.M., FRONTASYEVA M.V., PERESODOV V.F., CHINAEVA V.P., OSTROVNAYA T.M., GUNDORINA S.F. et NIKONOV V.V., 1995. Resonance neutrons for determination of elemental content of moss, lichen and pine needles in atmospheric deposition monitoring. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Art.*, 192, 23, 229-238.

PERSSON R.B.R., HOLM E. et LIDEN K., 1974. Radiolead (^{210}Pb) and stable lead in the lichen *Cladonia alpestris*. *Oikos* 25, 2, 140-147.

PILEGAARD K., 1985. Biological monitoring of airborne deposition around exposed mineralizations in Greenland. *Proc. Intern. Conf. on Heavy Metals in the Environment* (T.D. Lekkas), Athens, 518-520.

PILEGAARD K., 1993. Biological monitoring of particulate pollutants during exploration work at a niobium mineralization in Greenland. *Environ. Monit. Assess.* 27, 221-232.

ROBBINS, 1978. Geochemical and geophysical applications of radioactive lead ; in N'RIAGU J.O. & al., The Biochemistry of lead in the environment. Elsevier, 285-393.

SANTOS P.L., GOUVEA R.C. et DUTRA I.R., 1993. Lead-210 in vegetables and soils from an area of high natural radioactivity in Brazil. *Sci. Total Environ.* 138, 37-46.

SHEARD J.W., 1986a. Distribution of uranium series radionuclides in upland vegetation of northern Saskatchewan. I. Plant and soil concentrations. *Can. J. Bot.* 64, 2446-2452.

SHEARD J.W., 1986b. Distribution of uranium series radionuclides in upland vegetation of northern Saskatchewan. II. Patterns of accumulation among species and localities. *Can. J. Bot.* 64, 2453-2463.

SHEPPARD M.I. et THIBAUT D.H., 1984. Natural uranium concentrations of native plants over a low-grade ore body. *Can. J. Bot.* 62, 1069-1075.

SVOBODA J., TAYLOR H.W. et LEI T.T., 1985. Survey of the Keewatin uranium mineralization areas with respect to natural occurrence of radionuclides in vegetation, soils and sediments. *Environmental Studies No. 41. Report to ALUR, Dept. Indian and Northern Affairs, Ottawa*, 77 pp.

THOMAS P.A., SHEARD J.W. et SWANSON S., 1994. Transfer of ^{210}Po and ^{210}Pb through the lichen-caribou-wolf food chain of northern Canada. *Health Phys.* 66, 6, 666-677.

VAN HALUWYN C. et DAILLANT O., 1992. Analyses de radioactivité sur des lichens prélevés à Gravelines. *Bull. Observatoire Mycologique* 2, 5.

Mots clés

Uranium ; Radium ; Plomb 210 ; Thorium 228
Parmelia sulcata *Xanthoria parietina*.

Key words

Uranium ; Radium ; Lead 210 ; Thorium 228
Parmelia sulcata *Xanthoria parietina*.