

LES LICHENS, INTÉGRATEURS DE TRITIUM ET DE CARBONE 14

Compte rendu d'un article et d'une conférence

Olivier Daillant

Le présent compte-rendu porte sur une recherche du tritium et du carbone 14 dans les lichens dans un esprit de bio-indication : les premiers résultats figurent dans Daillant et al (2004) et des résultats complémentaires ont été présentés au congrès BIOMAP en Slovénie, organisé conjointement par l'Institut Jozef Stefan de Ljubljana et l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) de Vienne (Daillant et al 2003).

Personnes ayant contribué à ces recherches :

Olivier Daillant, (Observatoire Mycologique, F - 71 250 Mazille - France), **Roland Tesch**, Forschungszentrum Seibersdorf, A . 2444 Seibersdorf - Autriche, **David Boilley**, Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest (ACRO, 138, rue de l'Eglise, F. 14 200 Hérouville-Saint-Clair - France), **Gerald Kirchner**, Universität Bremen, Fachbereich Physik, D. 28 334 Bremen, Allemagne, **Martin Gerzabek** (actuellement : Universität für Bodenkultur), Forschungszentrum Seibersdorf, A . 2444 Seibersdorf - Autriche, **Gilbert Pigrée**, Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest (ACRO, 138, rue de l'Eglise, F. 14 200 Hérouville-Saint-Clair - France) et **Justin Porstendörfer**, Universität Göttingen, Central Isotope Laboratory - Burckhardtweg 2, D. 37 077 Göttingen -Allemagne.

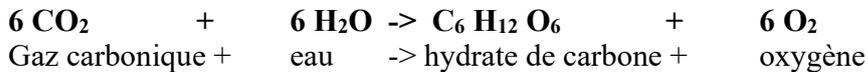
NB : une version adaptée de ce compte-rendu est également sous presse dans le Bulletin de l'Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest.

Introduction 1

L'hydrogène et le carbone sont deux des principaux constituants de la matière vivante, donc des lichens ; ces derniers représentent en raccourci la chaîne trophique : assimilation par les végétaux (ici les algues) -> transmission des synthétats aux organismes hétérotrophes (ici les champignons).

L'assimilation de l'hydrogène (H ou ^1H s'il s'agit de son isotope le plus répandu) se fait à partir de l'eau (H_2O), principalement lors de la photosynthèse. A l'issue de ce processus il se lie au carbone présent dans l'atmosphère sous forme de CO_2 pour former des hydrates de carbone, qui sont la base des molécules organiques. Les étapes de la

photosynthèse sont extrêmement complexes, et ne sont donc pas détaillées ici : la réaction peut néanmoins être résumée comme suit :



Il existe également des processus métaboliques non photosynthétiques, tels la respiration, mais ils ne seront pas traités ici car ils ont une part minoritaire dans l'assimilation de l'hydrogène par les lichens (Cowan et *al.*, 1979a et b, parlent de 8 %).

Introduction 2

Si ^1H (protium) est l'isotope le plus répandu de l'hydrogène, il existe également les isotopes ^2H (deuterium ou D, élément constituant de l'eau lourde) et ^3H (**tritium ou T**). C'est l'isotope radioactif de l'hydrogène de période physique (ou demi-vie) de **12,3 ans**. Il peut être présent dans l'environnement soit sous forme d'hydrogène tritié (**HT**), sous forme d'eau tritiée (**HTO** : un atome d'hydrogène stable, un atome de tritium et un atome d'oxygène) ou lié à d'autres atomes, en particulier à des atomes de carbone qui constituent les hydrates de carbone de la matière organique ; on parle alors de tritium organiquement lié (parfois appelé **OBT** dans la littérature : Organically Bound Tritium), très stable. Lié à d'autres atomes, il est par contre échangeable avec des atomes d'hydrogène stable.

L'activité spécifique du tritium est de $3,57 \times 10^{14}$ becquerels par gramme de tritium, soit 357 térabecquerels (1 Bq = une désintégration d'un atome par seconde)..

L'inventaire mondial du tritium d'origine naturelle serait de 2,8 à 3,7 kg.

Le tritium injecté dans l'atmosphère lors des essais nucléaires atmosphériques aurait apporté une charge ajoutée de l'ordre de 600 kg (en 1963).

Activités habituelles: En 2000 les activités des eaux de surface et des eaux de pluie étaient de 1 à 2 becquerels par litre, les activités de la vapeur d'eau atmosphérique étaient variables mais plus élevées en moyenne.

S'il existe dans l'environnement du fait de l'action du rayonnement cosmique sur la haute atmosphère, il est aujourd'hui aussi et surtout présent, à l'échelle mondiale, du fait des essais nucléaires atmosphériques et de diverses activités : les réacteurs, le retraitement du combustible (usine de la Hague).

Son utilisation est fondamentale dans le secteur nucléaire militaire où il est utilisé dans la réaction thermonucléaire : c'est la fusion du tritium et du deuterium qui est utilisée (« bombe H »), la réaction nécessitant cependant une explosion nucléaire « classique » basée sur l'uranium 235 ou le plutonium 239 pour être amorcée. Si un jour la fusion civile devait être tentée pour la production d'énergie, l'utilisation de tritium y serait massive. L'aspect le plus problématique réside dans la difficulté à le confiner (c'est de l'hydrogène) et dans sa mobilité dans l'environnement.

La Directive du Conseil 96/29 de 1996 (EUR 1996) fixe des coefficients de dose efficace variables selon le mode d'incorporation par l'organisme humain et l'âge, en fonction

desquels sont déterminées les limites annuelles d'incorporation. La Directive 98/83 (EUR 1998) du Conseil sur la qualité de l'eau pour la consommation humaine fixe, dans son annexe C une limite de 100 Bq/l pour l'eau potable.

L'isotope du carbone le plus répandu est le ^{12}C , mais il existe aussi le ^{13}C et le **carbone 14** (^{14}C), isotope radioactif qui a une demi-vie de 5730 ans et est bien connu pour ses applications en matière de datation. Il est lui aussi créé par le rayonnement cosmique et sa présence dans l'atmosphère a aussi été augmentée lors des essais nucléaires atmosphériques, principalement par activation du carbone présent sous forme de CO_2 . Il résulte également du fonctionnement normal des installations nucléaires, ici aussi par activation du CO_2 et est même considéré comme l'élément principal d'exposition des populations des abords des centrales nucléaires dans les pays où il est pris en compte (Allemagne, Suisse). Des détails en langue française ou allemande peuvent être obtenus sur le site internet de l'autorité sanitaire suisse www.suer.ch. Il convient encore d'ajouter que toute une industrie existe autour de l'utilisation du carbone 14 dans ses applications archéologiques, biologiques et techniques.

La concentration contemporaine de carbone total dans l'atmosphère est de 350 ppm.
Ce carbone présent dans l'atmosphère a une activité en carbone 14 d'environ 230 becquerels par kilogramme de carbone total.
la concentration moyenne en carbone 14 cosmogénique dans la troposphère est de 0,056 Bq/m³ (UNSCEAR 2000).

Introduction 3

Si les lichens sont aujourd'hui largement connus pour leur potentiel de bio-accumulation de différents éléments traces, dont des éléments radioactifs, peu de travaux étaient disponibles sur ce que nous pourrions appeler la bio-intégration de ces deux éléments problématiques que sont le tritium et le carbone 14.

Le tritium a certes été utilisé par Cowan *et al* (1979 a et b) pour étudier le métabolisme des lichens, à la lumière ou dans l'obscurité, en état d'activité ou de dormance (état dit anhydrobiotique). Le principal résultat nous intéressant est que l'assimilation du tritium par des processus non photosynthétiques ne dépasse pas 8 % ; l'objectif de ces auteurs n'était cependant pas axé sur la bio-indication. Ichimasa *et al* (1989) par contre visaient au moins partiellement la bio-indication dans leurs expériences *in vitro* : l'objet de leurs travaux consistait à observer la vitesse à laquelle le tritium moléculaire (potentiellement présent dans l'atmosphère suite à un relâchement accidentel) était oxydé pour former de l'eau tritiée (HTO, beaucoup plus radiotoxique que le HT) en présence de différents organismes ou organes : aiguilles de pin, mousses et lichens. Le principal résultat nous intéressant est que des taux d'oxydation allant jusqu'à 3 % par heure ont été observés en présence de *Parmelia tinctorum* *in vitro*.

Le carbone 14 a par contre été utilisé sur une échelle beaucoup plus vaste pour l'étude du métabolisme des lichens : les travaux sont trop nombreux pour être passés en revue ici mais un bon état des lieux peut être trouvé dans le travail de Palmqvist (2000). Nous

pouvons aussi citer au passage les premières tentatives d'utilisation du carbone 14 dans les lichens à des fins de datation des thalles (Clark *et al* 2000, Bench *et al* 2001). Par contre nous n'avions pas connaissance d'autres travaux axés spécifiquement sur la bio-indication de ces éléments.

1. SITES ETUDIÉS, ECHANTILLONNAGE ET METHODES D'ANALYSE

1.1 Les sites (voir fig. 1)

Les études ont porté sur des sites supposés éloignés des activités nucléaires dans le Morvan et en Bourgogne du sud, sur les environs d'une centrale nucléaire, sur les environs de l'usine de retraitement de combustible irradié de la Hague et sur les environs du Centre d'Etudes Nucléaires de Valduc (entre 2000 et 2003). Un échantillon a également été prélevé à Vienne (Autriche) et des transplants ont été réalisés.

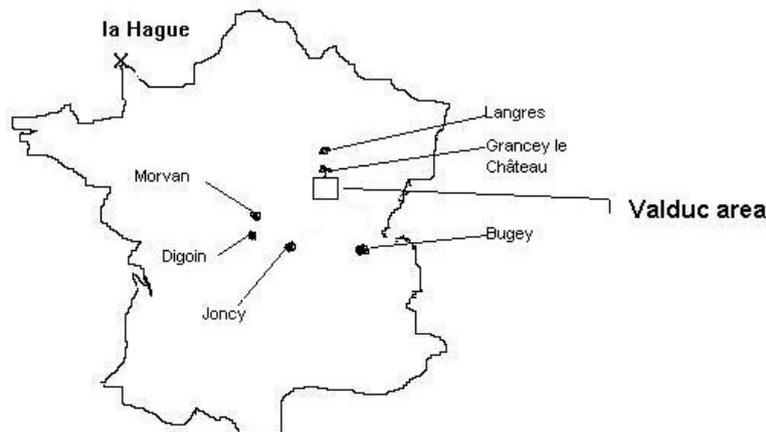


Fig. 1 : Localisation des sites de prélèvements

1.1.1 Echantillons témoins

Les échantillons témoins ont été prélevés en 1998 et 1999 sur des écorces dans des zones à l'écart d'installations nucléaires, dans le Parc Naturel du Morvan et à Digoin. Un échantillon a par ailleurs été prélevé en 2002 à Jancy (Saône-et-Loire) sur le site où ont été effectués les transplants d'échantillons contaminés.

1.1.2 Centrale nucléaire

Deux échantillons ont été prélevés près de la centrale nucléaire du Bugey (Ain) en 2003, l'un à environ 1 km à l'est, l'autre à environ 1 km au nord.

1.1.3 La Hague (sur la côte Nord-Ouest de la Normandie)

Un échantillon a été prélevé sur des rochers entre l'usine de retraitement et la côte, à environ 4,5 km de la source et l'autre à environ 3,5 km à l'intérieur des terres. Ces

échantillonnages ont été faits en 1999 puis répétés en 2003. Cette installation est connue pour ses émissions de ^3H et de ^{14}C (Tableau 1). Les activités de tritium et de carbone 14 émises sont corrélées aux quantités de combustible retraité. Bien que les émissions de tritium de cette installation aient toujours été largement inférieures aux autorisations réglementaires, elles ont régulièrement augmenté dans les dix dernières années pour atteindre 80 TBq (émissions atmosphériques) en 1999, l'année du premier échantillonnage.

1.1.4 Le Centre d'Etudes Nucléaires de Valduc

Géré par le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique), il se situe dans une zone boisée, à une altitude de 500 m environ, à 35 km au nord de Dijon. Il s'agit d'un centre essentiellement militaire où sont, depuis 1958, assemblées entretenues et démantelées les têtes nucléaires. Les données relatives aux émissions dans l'environnement ne sont plus confidentielles et une structure d'information a été créée en 1997 : la SEIVA, Structure d'échanges et d'information autour de Valduc. En 2000, cette structure a commandé des analyses d'OBT dans les lichens. Les émissions depuis 1986 ont été publiées récemment par l'exploitant (*Savoir et comprendre*, 1997 et années suivantes) et il en résulte que les valeurs ont diminué récemment (Tableau 1). Cette activité des dernières années (entre 241 et 313 TBq), équivaut néanmoins à 1 % de la production naturelle de l'hémisphère Nord, d'après les chiffres cités par Belot *et al* (1996).

Les vents dominants sont de nord-est (en hiver) et du sud (le reste de l'année). La fréquence des vents d'une vitesse inférieure à 2m/s (absence de vent) est de 33 %. L'arrêté du 3 mai 1995 a fixé les limites d'émissions atmosphériques de tritium à 1850 téraBecquerels (TBq) par an.

1.1.5 Vienne

Les échantillonnages de terrain ci-dessus ont été complétés par l'analyse d'un échantillon prélevé à Vienne non loin de la station météo qui transmet régulièrement ses échantillons d'eau de pluie et d'eau issue de l'humidité atmosphérique au Forschungszentrum Seibersdorf pour analyse du tritium. Enfin, des exemplaires d'une population moyennement contaminée par le tritium, provenant de Grancey-le-Château (Côte d'Or, à 20 km au nord du centre de Valduc) ont été transplantés à un peu plus de 100 km, à Joncy (Saône-et-Loire) en 2001 et analysés à nouveau en 2002 (deux sous-échantillons) et en 2003.

1.2 Espèces sélectionnées et méthode d'échantillonnage

Les échantillons ont été prélevés dans des lieux ouverts afin d'éviter des micro-niches écologiques. Différents critères ont guidé le choix des espèces : à une exception près, des lichens à *chlorophyceae* ont été prélevés du fait du peu de lichens gélatineux disponibles et des incertitudes au sujet des transferts sol/lichens pour les espèces de *Peltigera*. Les autres lichens terricoles ont été exclus pour les mêmes raisons. Le substrat devait être approximativement datable et les thalles devaient être disponibles en quantité suffisante

pour obtenir des résultats analytiques fiables (une dizaine de grammes de lichens secs sont nécessaires). Les espèces étaient *Evernia prunastri*, *Parmelia caperata*, *Parmelia sulcata*, *Ramalina siliquosa* et *Xanthoria parietina* ainsi que *Leptogium sp.* (lichen à cyanobactérie) dans un cas..

La plupart des échantillons ont été prélevés dans des périodes humides, de telle sorte que les thalles devaient juste être séparés de leur substrat. Dans certains cas, les lichens ont du être humectés en utilisant une eau à basse activité de tritium ($< 0,1 \text{ Bq.L}^{-1}$) fournie par le CEA. Tous les échantillons ont été transportés à l'obscurité dans des sacs en plastique puis séchés à température ambiante sur un exsiccateur à tambour pendant 2 h environ, afin d'arriver à une teneur résiduelle en eau inférieure à 10 %. Les échantillons de différentes origines ont été traités séparément. Ils ont ensuite été envoyés au laboratoire d'analyse : lors de la première campagne d'analyses, la plupart d'entre eux ont été trempés pendant une nuit dans de l'eau de référence (à basse teneur en tritium) afin d'extraire la fraction échangeable de tritium organiquement lié (éventuellement présente). Finalement, les lichens ont été passés à l'étuve à 60°, en commençant par les échantillons supposés moins contaminés. Durant la deuxième série d'analyses, la macération dans l'eau de référence a été abandonnée : il s'est avéré qu'elle ne modifiait pas le résultat final et occasionnait une prolifération algale.

L'âge des lichens n'a pu être déterminé que de façon approximative : parfois il était possible de connaître l'âge précis du substrat (tuiles ou arbres plantés par la commune), mais dans d'autres cas il s'agissait plutôt d'une estimation : autour de l'étang de Valduc, les lichens se développant sur les branches ont été considérés plus jeunes que ceux présents sur les troncs de chênes qui étaient clairement plus vieux que le Centre de Valduc.

Les transplants ont été réalisés avec des échantillons d'*E. prunastri* massivement présents sur les pruneliers du plateau calcaire de Grancey-le-Château : les branches ont été coupées au sécateur et réunies en bouquets ; ceux-ci ont alors été suspendus aux branches d'arbres du site d'importation, à la même altitude avec une configuration pédogéologique et une végétation comparables.

2.2 Méthode analytique

Si le tritium et le carbone 14 sont intégrés dans la matière végétale par photosynthèse, leur séparation exige le processus inverse, à savoir la combustion. Les échantillons sont brûlés, l'hydrogène (le tritium) et le carbone sont dissociés et oxydés en H₂O (HTO) et en CO₂. Leau de combustion est récupérée et mesurée directement : elle est mélangée à un cocktail de scintillation où les désintégrations des atomes radioactifs sont mises en évidence et amplifiées dans un compteur.

La mesure du carbone 14 exige une étape supplémentaire : il est piégé et transformé en carbonate de sodium dans une fiole d'hydroxyde de sodium, avant d'être mélangé au cocktail de scintillation.

Le comptage a été réalisé trois fois quatre heures dans un compteur à bas bruit de fond de type Quantulus (Wallac, Turku, Finlande), avec une limite de détection de $1,2 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le tritium et 14 Bq.kg^{-1} pour le carbone 14 (intervalle de confiance 2 sigma).

Pour les détails techniques des procédures analytiques on se reportera aux deux documents de référence (Daillant *et al* 2003 et Daillant *et al* 2004).

3. Résultats

3.1 Objet des résultats

Il convient de préciser, concernant le tritium organiquement lié (OBT), que les résultats ne portent que sur les atomes de tritium liés à des atomes de carbone dans les molécules des tissus lichéniques, considérés comme stables. Les atomes de tritium liés à d'autres éléments, dans le cas de liaisons O – H par exemple, sont considérés comme échangeables et entrent assez rapidement en équilibre avec la concentration en tritium de leur environnement. Dans le contexte des lichens, cet équilibre est réalisé au bout de cinq jours d'après Cowan *et al* (1979 a et b). Entre un tiers et 40 % des atomes d'hydrogène (ou de tritium) des molécules constituant les lichens se trouvent en position échangeable.

3.2 Expression des résultats

Les résultats d'analyses de radioactivité dans l'environnement s'expriment normalement en becquerels par unité de masse ou de volume ; un becquerel (Bq) correspond à une désintégration d'un atome par seconde. Dans le cas des lichens, ils sont exprimés en Bq par kg de masse lichénique sèche.

3.2.1 Tritium organiquement lié

Ainsi, les résultats de la première série d'analyses (année 2000) sont-ils exprimés également en Bq.kg^{-1} (matière sèche) sur le tableau 2. Néanmoins, des résultats présentés en Bq par litre d'eau issue de la combustion présentent une meilleure lisibilité, pour plusieurs raisons :

- 1) c'est l'une des étapes de l'analyse (les résultats sur la matière sèche en sont dérivés) ;
- 2) la masse minérale parfois inégale des thalles ne fausse pas la comparabilité des résultats ;
- 3) la combustion est à considérer comme l'inversion de la photosynthèse et la radioactivité de l'eau de combustion est à voir comme le reflet dans un miroir de la radioactivité de l'eau de photosynthèse (sous réserve d'un certain nombre de phénomènes dont il sera question plus loin).

Les résultats sont en conséquence également rapportés à l'eau de combustion dans le tableau 2. Les tableaux 4 et 5 ne les présentent que en fonction de l'eau de combustion.

Dans certains cas, lorsque l'activité est très basse dans certains compartiments de l'environnement, l'activité est exprimée en unités tritium, une UT correspondant à un atome de T pour 10^{18} atomes d'hydrogène, ou encore $0,12 \text{ Bq.L}^{-1}$ d'eau.

3.2.2 Carbone 14

Dans notre expérience, la teneur en carbone des lichens est légèrement inférieure à celle des autres matières végétales : environ 40 %, ce qui correspond au pourcentage théorique : le mannitol par exemple ($\text{C}_6\text{H}_{14}\text{O}_6$), l'un des principaux sucres stockés par le partenaire fongique, donnerait 40 % de carbone et 6,7 % d'hydrogène en se basant sur une masse minérale d'environ 8 % ; le ribitol ($\text{C}_5\text{H}_{12}\text{O}_5$) a une composition comparable et les substances lichéniques de structure (chitine) ou les substances lichéniques secondaires peuvent différer légèrement sans pour autant modifier l'équilibre général.

Par contre, après soustraction de la masse minérale, la teneur en carbone est relativement constante et stable. Les résultats dont il est question ici sont présentés par rapport à la matière sèche dans le cas de la première série d'analyses (2000) et en activité de carbone 14 ajoutée par rapport au fond naturel contemporain dans la seconde (2003). Certaines études expriment néanmoins les résultats en carbone 14 par rapport à une unité de masse de carbone total ($\text{Bq.kg}^{-1} \text{ C}$, voir § 4.7 ci-après).

3.3 Présentation des résultats

Les résultats des analyses de tritium organiquement lié sont présentés sur les tableaux 2, 4 et 5 et ceux des analyses de carbone 14 sur le tableau 3. La marge d'erreur des tableaux représente l'incertitude statistique du comptage de 2 sigma. Pour des matériaux autres que les lichens nous supposons habituellement une incertitude supplémentaire d'environ 5 % principalement due aux fluctuations du rendement de combustion et aux incertitudes sur les transferts volumétriques.

Les deux échantillons provenant d'une zone éloignée de toute source de contamination présentaient une activité de 1,5 et 2,2 Bq.kg^{-1} (matière sèche), soit 3,1 et 4,8 Bq.L^{-1} d'eau de combustion, ce qui correspond aux concentrations attendues (du fait du tritium dans l'eau de pluie et la vapeur d'eau résultant des essais nucléaires atmosphériques) : les concentrations dans l'eau de pluie en Europe centrale ont atteint 150 Bq.L^{-1} après l'interdiction des essais atmosphériques en 1963 (Rank, 1993, cité in Belot et al 1996) et ont progressivement diminué pour arriver à 2 Bq.L^{-1} en 1991 (Belot et al. 1996). D'après Fournier et al (1999), l'activité de l'eau de pluie était d'environ 1,5 à 2 Bq.L^{-1} à Charleville Mézières, dans l'est de la France et d'environ 1 Bq.L^{-1} dans d'autres stations en France, avec des dépassements occasionnels, comme à Orsay, près de Paris (1,2 à 15 Bq.L^{-1}). L'échantillon témoin (*Xanthoria parietina*) prélevé à Vienne présente une activité de 5,1 Bq.L^{-1} d'eau de combustion. A noter néanmoins que l'échantillon d'*Evernia prunastri*, servant de témoin par rapport aux échantillons transplantés en 2001 atteint 7 Bq.L^{-1} .

Les deux échantillons de la région de la Hague présentaient en 1999 une activité de 10 et de 11,5 Bq.kg⁻¹, c'est-à-dire 20,5 et 24,2 Bq par litre d'eau de combustion, ce qui correspond à environ 5 à 8 fois le fond. En 2003, les concentrations étaient inférieures avec respectivement 7,8 et 13,3 Bq.L⁻¹ pour les échantillons de la même espèce prélevés sur les mêmes stations.

Concernant les abords de la centrale nucléaire du Bugey, *E. prunastri* prélevé à 1 km au nord présentait une contamination de 11,3 Bq/l d'eau de combustion, soit environ le triple des témoins foliacés ou le double d'*E. prunastri* de Saône-et-Loire. *Parmelia caperata* (1 km à l'est de la centrale) présente une activité légèrement supérieure au fond avec 7,3 Bq.L⁻¹.

Comparés aux lichens provenant de sites correspondant au fond, les échantillons de lichens prélevés aux abords de Valduc présentent tous des concentrations très élevées de tritium organiquement lié, dont certaines dépassent 10000 Bq.L⁻¹ d'eau de combustion. Par rapport aux échantillons des zones non contaminées, la contamination est supérieure d'un facteur 1000. Un échantillon (considéré « ancien ») venant d'un village à 4 km au nord sous les vents dominants présente une concentration s'inscrivant dans le même ordre de grandeur. Dans ce secteur, l'activité des autres échantillons (considérés plus « jeunes ») est de centaines de Bq par kg. Les lichens provenant d'un secteur situé au sud et sud-est de la source (Moloy, échantillons présentent une activité d'environ 70 Bq.kg⁻¹. La petite ville de Grancey-le-Château est située à environ 20 km du Centre mais se situe sous les vents dominants. La contamination y est toujours frappante (toujours un facteur 10), bien que dans une moindre mesure pour l'échantillon dont l'âge a été estimé inférieur à 10 ans.

4. Interprétation des résultats et commentaires

Les mécanismes en jeu ici diffèrent fondamentalement de la bio-accumulation des éléments radioactifs classiques et des éléments traces particulaires : après dépôt humide ou sec sur les arbres, les particules sont transportées le long du tronc par ruissellement de l'eau de pluie et piégées par les lichens. Après évaporation de l'eau, les éléments traces peuvent rester physiquement piégés dans les thalles, se fixer aux récepteurs des membranes cellulaires du partenaire fongique ou peuvent finalement être stockés au niveau intracellulaire (Brown et Brown 1991). Leur accumulation et leur excrétion sont des processus dynamiques présentant des taux de transfert spécifiques à chaque élément et des périodes biologiques. Dans le cas présent cependant, le tritium comme le carbone sont intégrés par le processus photosynthétique.

La proportion de tritium intégrée par photosynthèse (ou dans une mesure moindre par le métabolisme « sombre », Cowan *et al* 1979b) est ainsi soumise à l'influence directe de la proportion de tritium dans l'eau de pluie et/ou dans l'humidité atmosphérique.

Les lichens échantillonnés n'ayant pas de contact avec le sol, l'influence de l'eau du sol peut être exclue.

De même, la proportion d'atomes de carbone 14 dans les tissus lichéniques correspond-elle à la proportion de ce carbone 14 dans le CO₂ atmosphérique.

4.1 Fraction échangeable

Entre 30 et 40 % des atomes de tritium organiquement lié sont en position échangeable dans les molécules des tissus lichéniques (voir plus haut, 3.1 Objet des résultats). Cette fraction entre en équilibre avec l'environnement (c'est à dire avec l'hydrogène et le tritium présents dans l'atmosphère) assez rapidement et n'est donc plus présente au moment de l'analyse (à moins que le laboratoire ne soit contaminé).

4.2 Effet cinétique et fractionnement isotopique

Lors de l'intégration par les plantes vasculaires de pluie tritiée ou de vapeur d'eau tritiée, une discrimination isotopique peut avoir lieu (Mac Farlane, 1976 ; Strack, 1978). Néanmoins, chez les lichens les barrières physiques sont plus faibles, aboutissant probablement à une discrimination réduite, même si les thalles sont soumis à des cycles hydratation/dessication beaucoup plus nombreux. Strack (1978) a examiné des hypothèses relatives à l'effet cinétique du tritium et a réalisé une revue approfondie des études liées à un possible effet de discrimination isotopique par les végétaux : les résultats dans la littérature semblent contradictoires. Cet auteur a néanmoins concentré ses recherches sur l'intégration du tritium par les algues vertes dans différentes conditions de culture et il concluait que la discrimination isotopique amenait l'algue à n'intégrer que 80 % du tritium potentiellement disponible. Cette discrimination de 20 % de la part des algues correspond aux pourcentages évoqués par d'autres auteurs (Mac Farlane 1976, revue de Belot 1986) pour d'autres espèces de végétaux, de telle sorte qu'une incertitude du même ordre pourrait aussi être envisagée pour les lichens ; notre conclusion selon laquelle les lichens présentent une activité en tritium organiquement lié reflétant l'activité dans l'environnement (eau de pluie ou humidité atmosphérique) sous réserve d'une incertitude de +/- 20% est étayée par nos résultats sur des lichens échantillonnés dans des sites non contaminés présentant des activités du même ordre que celles auxquelles on pouvait s'attendre du fait de l'activité de la pluie et de l'humidité de l'atmosphère durant ces dernières années.

4.3 Oxydation du tritium moléculaire

Les émissions tritiées du Centre de Valduc se présentent sous forme de tritium moléculaire, HT (25 %) et de vapeur d'eau tritiée, HTO (75 %). Les proportions des émissions de la Hague sont à peu près les mêmes. Seul le tritium sous sa forme HTO est intégré dans les lichens lors de la photosynthèse : il peut être apporté sous forme de pluie

tritiiée et aussi, dans le cas présent où des lichens à *chlorophyceae* ont été prélevés, sous forme de vapeur d'eau atmosphérique.

Il a néanmoins été observé que les lichens foliacés peuvent oxyder le HT (tritium moléculaire) ; ce mécanisme pourrait aboutir à une accumulation d'OBT au fil du temps : Ichimasa et al. (1989) ont observé, lors d'expériences de laboratoire, des taux d'oxydation supérieurs à 3 % par heure pour *Parmelia tinctorum*, en se basant sur un rapport masse lichenique (poids frais) / volume d'air de 1 : 42, c'est-à-dire 0,3 g dans une éprouvette de 12,5 mL. En se basant sur une teneur en eau de 20 % et une oxydation de 1000 heures par an, les données relatées par Ichimasa et al. (1989) correspondent à une oxydation annuelle du HT qui pourrait apporter une contribution d'environ 30 Bq/kg/an à la concentration d'OBT (voir détails des calculs dans Daillant *et al* 2004). Il convient néanmoins de souligner que ce calcul surestime probablement la part due à l'oxydation biologique du HT : en premier lieu, les taux d'oxydation relevés par Ichimasa *et al.* (1989) l'ont été après un mélange forcé d'air et de lichens et à des températures élevées (20°), ce qui accélère le métabolisme. Deuxièmement, le calcul ci-dessus part du principe que les périodes d'émissions de HT coïncident toujours avec un vent dominant en direction des sites d'échantillonnage des lichens d'une part et avec une activité d'oxydation et de métabolisme d'autre part. Le caractère « conservateur » de notre calcul est aussi confirmé par les résultats d'analyses de tritium sur des échantillons proches de la Hague (Tableaux 2 et 5). Les concentrations d'OBT dans ces deux échantillons sont d'environ 10 Bq/kg (matière sèche) en 1999 et représentent le tritium accumulé dans la matière organique par l'incorporation du HTO et du HT biologiquement oxydé. D'autres processus d'oxydation existent, par exemple par l'ozone, mais ils sont très lents par rapport à l'oxydation biologique et Belot *et al.* (1996) mentionnent une période de demi-vie atmosphérique du HT de 10 ans.

Les auteurs sont par conséquent contraints de conclure que le niveau inattendu des concentrations d'OBT dans les lichens échantillonnés dans la région de Valduc ne peut pas être raisonnablement expliqué par les émissions du Centre de Valduc depuis 1986, telles qu'elles figurent sur le Tableau 1. Dans la mesure où aucun élément ne permet de douter du caractère complet de ces données, la seule explication raisonnable de cet écart est que les concentrations élevées en tritium résultent d'émissions « historiques » majeures du Centre de Valduc. Au vu des valeurs figurant sur le Tableau 2, des calculs évoqués ci-dessus et de la décroissance physique du tritium, ces relâchements « historiques » doivent avoir été très importants.

4.4 Corrélations avec d'autres compartiments de l'environnement

Dans la mesure où les lichens sont le reflet de l'activité en tritium de l'humidité atmosphérique dans les années passées, les plantes à croissance rapide et/ou ayant un système racinaire superficiel ont du présenter une activité en OBT du même ordre, tout au moins si l'on exprime cette activité par rapport à l'eau de combustion ; de plus, ces végétaux ont du avoir de l'eau libre avec des concentrations élevées en ³H. On peut en particulier penser à l'herbe, aux récoltes annuelles, aux légumes et aux baies. Une reconstruction de ces activités serait théoriquement possible, mais une connaissance

précise de l'évolution de la contamination avec ses pics durant les trois ou quatre dernières décennies au moins serait nécessaire pour accomplir cet exercice.

4.5 Variations interspécifiques

Sous réserve d'une teneur égale en carbone et en hydrogène des tissus des diverses espèces lichéniques, on peut s'attendre à ce que les concentrations en tritium soient les mêmes d'une espèce à l'autre (voir principe énoncé au début de la section). A l'examen du tableau 5, récapitulatif de l'ensemble des résultats, il apparaît néanmoins que souvent *E. prunastri* présente une activité plus importante que *P. sulcata* ou *X. parietina*. C'est le cas à Salives et, dans une moindre mesure, à Grancey-le-Château ainsi que sur les échantillons témoins. Cet écart semble essentiellement séparer les espèces foliacées des espèces fruticuleuses (*E. prunastri*). Il serait logique d'imaginer que ces dernières, offrant une plus grande surface aux échanges avec l'atmosphère, intègrent une plus grande part de tritium sous forme de vapeur d'eau tritiée alors que les espèces foliacées sont plus largement tributaires de l'eau de pluie ruisselant le long des troncs ou des murs. Un argument dans ce sens serait l'analyse d'un échantillon de lichens à cyanobactérie (*Leptogium sp*) prélevé en 2001 à Grancey-le-Château : 15,3 Bq/l d'eau de combustion alors qu' *E. prunastri*, prélevé sur la même station présentait une activité de 100 Bq.L⁻¹. Les lichens à cyanobactérie sont en effet réputés exploiter exclusivement l'eau sous forme liquide pour leur apport hydrique. Ce résultat est cependant isolé et demanderait à être répété pour confirmation, même si les difficultés de prélèvement de lichens gélatineux se sont avérées plus importantes que prévues.

4.6 Transplants et période effective

Afin de connaître le temps de résidence du tritium dans les lichens, des transplants ont été réalisés. Les échantillons ont été fractionnés et analysés au moment du prélèvement et du transplant (2001), puis un an plus tard (2 sous-échantillons analysés séparément) et deux ans plus tard. En 2002 un échantillon d'*E. prunastri* autochtone a également été analysé. L'activité est passée de 100 Bq.L⁻¹ à 51,5 (50,5 et 52,5) au bout d'un an et à 32,5 Bq.L⁻¹ au bout de deux ans. L'activité du témoin était 7 Bq.L⁻¹. Il est difficile de dire si ce dernier chiffre correspond plus à un résidu historique, à un fond naturel ou à une influence résiduelle d'une source particulière (Centre de Valduc à une centaine de km au nord, vallée du Rhône à une centaine de km au sud). Dans ces circonstances, nous considérons que la période effective, c'est à dire la demie-vie biologique corrigée de la demi-vie physique, du tritium dans ces lichens est de l'ordre d'un an, sans exclure qu'un compartiment minoritaire ait une période plus longue.

4.7 Comportement d'un panache

Souvent la modélisation d'émissions se fait suivant un modèle hémisphérique, dans lequel la concentration atmosphérique d'un polluant décroît en fonction du cube de la distance. Ce modèle théorique est alors combiné aux paramètres importants comme la hauteur de la cheminée, la vitesse et la direction du vent etc... pour aboutir à une

équation trop longue pour l'espace alloué à cet article. Au vu des résultats relatés dans les tableaux 2 et 5, il semble que dans le cas présent, la réalité ne corresponde pas à la théorie : voir dans ce sens les concentrations de tritium organiquement lié à Grancey-le-Château, à 20 km de Valduc et ceux de Langres, à plus de 40 km. Les paramètres qui seraient à intégrer dans les modèles sont sans doute encore plus nombreux que ceux couramment utilisés, d'autant plus que nous sommes sans doute en présence de deux vecteurs, celui des pluies tritiées et celui de la vapeur atmosphérique.

4.8 Le carbone 14

Comme le tritium, le carbone 14 est intégré dans les lichens par la photosynthèse du CO₂. La variabilité des concentrations de ¹⁴C dans les échantillons autres que ceux de la Hague est faible (Valduc n'émet pas de carbone 14 de façon significative); il est donc raisonnable de supposer qu'ils reflètent des concentrations de ¹⁴C en équilibre avec le ¹⁴C d'origine naturelle (cosmogénique). Une concentration médiane de 113,5 +/- 11,2 (écart type) est calculée à partir de ces chiffres. Cela mène à une activité de l'ordre de 226 Bq/kg de carbone (en supposant que 40 % de la masse du lichen est composée de carbone), ce qui équivaut à la concentration d'étalonnage pour le carbone 14 contemporain des échantillons du National Bureau of Standard (Otlet *et al.* 1983). En comparaison, les échantillons de lichens prélevés aux abords de La Hague en 1999 provenaient d'une population présentant des concentrations élevées en ¹⁴C (sauf si nous supposons une teneur en carbone des lichens largement supérieure à 50 %). Ces résultats (141 à 185 % du fond contemporain) ne sont pas particulièrement élevés par rapport aux activités d'autres plantes telles que relatées par le Groupe Radioécologie Nord Cotentin. Ces résultats étaient exprimés non pas en rapport à la matière sèche mais par kilogramme de carbone total.

Voici quelques exemples :

Haricots :	475 Bq kg ⁻¹ C	soit	210 % du ¹⁴ C contemporain
Salade:	500 Bq kg ⁻¹ C		221 %
Herbe:	629 Bq kg ⁻¹ C		278 %
Herbe: (1996)	752 Bq kg ⁻¹ C		330 %

Les échantillons prélevés et analysés en 2003, exprimés en pourcentage du carbone 14 contemporain, témoignent d'une certaine constance ; l'échantillon n°1 de *Ramalina siliquosa*, par exemple avait une activité en carbone 14 de 161 % du fond contemporain en 1999 et de 185 % en 2003. Compte-tenu des incertitudes inhérentes à ce genre d'analyses, ces résultats peuvent être considérés comme étant du même ordre.

4.9 Aspects de « bio-monitoring »

Le suivi du tritium dans l'environnement semble bien pouvoir être réalisé de façon exemplaire par les lichens : ceux-ci intègrent tout au long de l'année la vapeur d'eau

comme l'eau de pluie tritiées. Le suivi géographique ne semble pas laisser de doute : dans le cas de Valduc, des émissions anciennes ont pu être décelées jusqu'à plus de 40 km. Les aspects historiques sont au moins aussi intéressants : il est vrai que la datation des échantillons s'est avérée être parfois difficile, voire hasardeuse dès que l'on dépasse l'horizon de la génération des lichens pionniers. Il a néanmoins été possible de suivre de façon tout à fait cohérente la décroissance d'OBT dans les lichens en fonction de la diminution des émissions de Valduc : *P. caperata* prélevé en 1997 présentait une contamination de 260 Bq.L⁻¹ alors que la même espèce prélevée en 2000 ne présentait plus qu'une activité de 144,5 Bq.L⁻¹. De même, l'échantillon de *E. prunastri* de Salives est-il passé d'une contamination de 6642 Bq.L⁻¹ en 2000 à 4305 Bq.L⁻¹ en 2003 et la même espèce prélevée à Grancey-le-Château a présenté en 2000, 2001 et 2003 une contamination respectivement de 151, 100 et 80 Bq.L⁻¹ (voir tableau 4). Cette évolution semble tout à fait cohérente avec la période effective du tritium dans les lichens et avec l'évolution des émissions du Centre, même si la question de la corrélation avec les chiffres absolus ne peut pas encore être tranchée en l'état.

4.10 Aspects de radioprotection

La directive européenne 96/29 Euratom du 13 mai 1996 fixe la limite de dose pour les personnes du public à 1 millisievert par an.

En cas d'ingestion d'eau tritiée, la dose d'un millisievert est atteinte par l'incorporation de 20 millions de becquerels chez l'enfant de 1 à 2 ans et de 55 millions de becquerels chez l'adulte (avec plusieurs tranches intermédiaires et une quantité moindre chez le nourrisson).

En cas d'ingestion de tritium organiquement lié, la même dose est atteinte par l'incorporation de 8,3 millions de becquerels chez l'enfant de 1 à 2 ans et de 24 millions de becquerels chez l'adulte.

En cas d'inhalation de vapeur d'eau tritiée, le calcul dépend de la rétention pulmonaire ("clearance" lente, moyenne ou rapide): chez l'enfant de 1 à 2 ans, la dose d'un mSv est atteinte par l'inhalation de 1 million de becquerels dans l'hypothèse la plus pénalisante et de 50 millions de becquerels dans l'hypothèse la plus favorable. Chez l'adulte, ces chiffres sont respectivement de 4 millions et de 170 millions de becquerels.

L'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) recommande de ne pas dépasser 7800 becquerels par litre pour l'eau de boisson.

La Directive Européenne 98/83 du 3 Novembre 1998 (EUR 1998), relative à a qualité des eaux destinées à la consommation humaine, préconise le respect d'une valeur de 100 Bq.L⁻¹.

Avant la transposition en droit français de la directive 96/29 (EUR 1996), la limite en vigueur était de 5 mSv (500 millirems de l'ancien système). Au vu des données dont nous disposons pour l'instant, il n'est pas possible de démontrer que cette limite a été approchée pour certains segments de la population avoisinante ; la démonstration contraire n'est cependant pas possible non plus.

Conclusion

Le tritium et le carbone 14 sont intégrés par photosynthèse, ce qui constitue une nouvelle approche de la bio-indication lichénique. Les concentrations élevées d'OBT relevées dans les lichens de sites contaminés démontrent leur potentiel pour un suivi ; ce suivi est ainsi possible non seulement pour les eaux météoriques tritiées mais aussi pour la vapeur d'eau tritiée, dont la présence et l'influence semble avoir été largement sous-estimée. Peut-être les lichens pourraient-ils même contribuer un jour à affiner l'inventaire global du tritium. Comparés à la plupart des plantes vasculaires, ils présentent plusieurs avantages : une activité continue presque tout au long de l'année, un métabolisme lent permettant une intégration à long terme ; de plus, si les échantillons sont choisis correctement, il n'y a pas de transfert sol-lichen.

Les résultats pour le carbone 14, quoique moins spectaculaires, sont toujours potentiellement significatifs.

Si l'industrie nucléaire ne relâche pas, en fonctionnement normal, d'éléments radioactifs associés à la chaîne de l'uranium et du radium, les centrales thermiques au charbon (ou aux produits pétroliers) en émettent des quantités non négligeables dans l'atmosphère (en fonction de la teneur en ces éléments du charbon ou du pétrole utilisés). Par ailleurs l'industrie nucléaire n'émet que peu de CO₂ en termes de masse, mais elle émet du carbone radioactif dans des proportions importantes en termes de radioactivité, alors que les centrales thermiques, réputées pour leurs émissions de gaz carbonique, n'émettent pas de carbone 14, qui s'est depuis longtemps dégradé dans les couches géologiques... La vie est bien compliquée.

Remerciements

Les auteurs souhaitent exprimer leurs remerciements à tous ceux ayant apporté leur aide ou leur soutien en accompagnant cette recherche. Ils souhaitent également remercier Cécile Gueidan pour la participation à l'échantillonnage, Laurent Jacquot pour les recherches bibliographiques et Claude Roux pour les informations sur l'écophysiologie des lichens, ainsi que le Président et la Chargée de Mission de la SEIVA, le Prof Gérard Niquet et Catherine Saut.

REFERENCES

Belot, Y., 1986 : Tritium in Plants : a review, *Radiation protection Dosimetry*, 16, 1 - 2, 101 - 105.

Belot Y., Roy M., Métivier H. (coordinateurs) 1996 : *Le Tritium, de l'environnement à l'Homme*, les Editions de Physique, 191 p.

Bench G., Clark B. M., Mangelson M. F., St Clair L. L, Rees L. B., Grant P.G., Southon J. R., 2001 : Accurate Lifespan Estimates cannot be obtained from ^{14}C Profiles in the crustose Lichen *Rhizocarpon geographicum* (L.) DC., *Lichenologist* 33 , 6, 539 – 542.

Brown, DH., Brown RM., 1991: Mineral Cycling and lichens: the Physiological Basis, *The Lichenologist*, 23, 293 - 307.

Clark B. M., Mangelson M. F., St Clair L. L; Rees L. B., Bench G. S., Southon J. R., 2000: measurement of age and growth rate in the crustose saxicolous lichen *Caloplaca trachyphylla* using ^{14}C accelerator mass spectrometry, *The Lichenologist*, 32 , 4, 399 – 403.

Cowan DA., Green TGA., Wilson AT., 1979 a : Lichen Metabolism. 1. The Use of Tritium Labelled Water in Studies of Anhydrobiotic Metabolism in *Ramalina celastri* and *Peltigera polydactyla*; *New Phytologist*, 82, 489 - 303.

Cowan DA., Green TGA., Wilson AT., 1979 b : Lichen metabolism 2 : Aspects of light and dark Physiology, *New Phytologist*, 83, 761 - 769.

Daillant O., Boilley D., Gerzabek M., Porstendörfer J., Tesch R., 2003 : Tritium and radiocarbon metabolism in lichens and their use as bio-monitors, BIOMAP Congress, Bled, Slovenia, 21 – 25 sept 2003.

Daillant O., Kirchner G., Pigrée G., Porstendörfer J., 2004 : Lichens as indicators of tritium and radiocarbon contamination, *the Science of the Total Environment*, 323, 1 – 3, 253 – 262.

EUR 1996: Council Directive 96/29 Euratom of May the 13th 1996, *Official Journal of the European Communities* L 159, of June the 29th 1996.

EUR 1998: Council Directive 98/83 on Water Quality for Human Consumption, of November 3 1998, *Official Journal of the European Communities* L 330/32 of May the 12th 1998.

Fournier M., Calmet D., Coreau N., Maignet A., 1999 : *Journées Tritium FFRP*, Paris 19/10/1999.

Groupe Radioécologie Nord Cotentin 2000: *Estimation of Exposure Levels to Ionizing Radiation and Associated Risks of Leukemia for Populations in the Nord-Cotentin*. IRSN; Synthesis 2000.

Ichimasa M., Ichimasa Y., Yagi Y., Ko R., Suzuki M., Akita Y, 1989 : Oxidation of Atmospheric Molecular Tritium in Plant Leaves, Lichens and Mosses; *Journal of Radiation Research* 30, 323 - 329.

Mac Farlane, J.C., 1976 : Tritium Fractionation in Plants, *Environmental and experimental Botany*, 16, 14 - 29.

Otlet R.L., Walker A.J., Longley H., 1983 : The Use of ^{14}C in Natural Materials to establish the Average Gaseous Dispersion Patterns of Releases from Nuclear Installations; *Radiocarbon*, 25, 2, 593 - 602.

Palmqvist K., 2000 : Carbon Economy in Lichens; *New Phytologist*, 2000., 148, 11 - 36.

Savoir et comprendre, 1997 et suite: Bulletin de la Structure d'Echange et d'Information sur Valduc (SEIVA) 3 n° par an ; ISSN: 1277 - 2879.

Strack S., 1978 : *Biokinetische Untersuchungen über organisch gebundenes Tritium in Algenkulturen*, Dietrich Reimer Verlag, Berlin, 97 p.

UNSCEAR 2000- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000: *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. UNSCEAR 200 Report to the General Assembly. United Nations, New York.

	VALDUC	La HAGUE	
	Tritium en TBq / y	Tritium en TBq / an	carbone 14 en TBq / an
1986	1400		
1987	2300		
1988	1050		
1989	1100		
1990	1000		
1991	1100		
1992	700		
1993	800		
1994	1200	55.5	5.9
1995	900	84.0	8.5
1996	553	75.0	12.0
1997	313	76.0	17.0
1998	324	72.0	20.0
1999	267	80.0	19.0
2000	241	79,0	19,0

Tableau 1: Emissions atmosphériques de tritium du Centre d'Etudes Nucléaires de Valduc et de l'usine de retraitement de La Hague et de carbone 14 de la Hague, selon les données des exploitants ; activités exprimées en terabecquerel par an (d'après Daillant *et al.* 2004).

Date	Lieu	Espèce	Activité Bq/kg (sec)	±	Activité Bq/l eau de combustion	±	Age présumé du substrat (en années)
août 1998	Morvan	<i>Parmelia sulcata</i>			3,1	0,4	
août 1999	Digoïn	<i>Xanthoria parietina</i>			4,8	0,4	
sep 1999	La Hague 1	<i>R. siliquosa</i>			24,2	1,3	
sep 1999	La Hague 2	<i>R. siliquosa</i>			20,5	1,2	
sep 2000	Etang de Valduc	<i>Evernia prunastri</i>	4219	±16	10421.6	42	10 à 15
sep 2000		<i>Evernia prunastri</i>	3896	±14	8338.0	30	> 40
sep 2000		<i>Evernia prunastri</i>	3982	±16	9413.7	38	"jeune"
sep 2000		<i>Evernia prunastri</i>	1515	±13	5666.8	48	> 40
sep 2000		<i>Parmelia sulcata</i>	3136	±16	10996.0	51	> 40
sep 2000	Salives: route de Moley	<i>Evernia prunastri</i>	2185	±13	6642.3	30	> 40
sep 2000	Sortie de Salives	<i>Parmelia sulcata</i>	274	±3	816.5	9	± 30
sep 2000	Salives: Fontaine et calvaire	<i>Xanthoria parietina</i>	471	±5	1095.0	11,5	8 à 10
sep 2000	Grancey le Château	<i>Evernia prunastri</i>	71	±1	156.6	2	± jeune
sep 2000		<i>Parmelia sulcata</i>	51	±2	126.0	5	> 50
sep 2000		<i>Xanthoria parietina</i>	16	±1	36.7	2	< 10
1997	Combe de Moley	<i>Parmelia caperata</i>	127	±6	265,0	13	
sep 2000	Combe de Moley	<i>Parmelia caperata</i>	67	±2	144.5	5	> 60
sep 2000	Moley, Monument aux Morts	<i>Parmelia sulcata</i>	69	±3	209.7	8	10 à 12
sep 2000	Moley, Pont du Moulin	<i>Parmelia sulcata</i>	70	±2	157.7	5	> 40

Tableau 2 : Résultats de la première campagne d'analyses (année 2000) exprimés en becquerels par kilo de lichen sec et en becquerels par litre d'eau de combustion, avec quelques indications sur le site et l'âge du substrat (d'après Daillant *et al.* 2004 et 2003).

Distance de la source	Date d'échantillonnage	Espèces	nombre d'échantillons	Résultats	
				Bq/kg sec	total $^{14}\text{C}/^{14}\text{C}$ contemporain
3 km	Feb 1999	<i>R. siliquosa</i>	1	192 ± 5,6	1.61 ± 0.25
4 km	Feb 1999	<i>R. siliquosa</i>	1	159,7 ± 5,1	1.41 ± 0.20
3 km	Aug 2003	<i>R. siliquosa</i>	1		1.85 ± 0.08
fond	Sep 2000	<i>E. prunastri</i>	2	113,5 ± 4,5	
	Sep 2000	<i>P. caperata</i>	1	117,5 ± 4,3	
	Aug 1998	<i>P. sulcata</i>	1	125,8 ± 4,5	
	Sep 2000	<i>P. sulcata</i>	4	113 ± 12	
	Sep 2000	<i>X. parietina</i>	1	98,8 ± 3,6	
1 km Est	Jun 2003	<i>P. caperata</i>	1		1.20 ± 0.07
1 km Nord	Jun 2003	<i>E. prunastri</i>	1		1.06 ± 0.06

Tableau 3 : Résultats d'analyses de carbone 14 exprimés en Bq/kg de lichen sec et/ou en proportion de ^{14}C ajouté par rapport au fond naturel contemporain (d'après Daillant *et al.* 2003).

Lieu	Distance de la source présumée	Date	Espèce	Type	Activité Bq/L eau de combustion	
La Hague 1	3 km intérieur terres	fev 1999	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	24,2 ±	1,3
La Hague 1a	3 km intérieur terres	août 2003	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	13,3 ±	0,6
La Hague 2	côte (4km)	fev 1999	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	20,5 ±	1,2
La Hague 2b	côte (4km)	août 2003	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	7,8 ±	0,5
Salives	4 km N	sep 2000	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	6642 ±	40
Salives	4 km N	mai 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	4305 ±	56
Moloy	4 km S-E	fev 1997	<i>P. caperata</i>	foliacé	265 ±	13
Moloy	4 km S-E	sep 2000	<i>P. caperata</i>	foliacé	145 ±	5
Grancey le Château	20 km N-E	sep 2000	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	157 ±	3
Grancey le Château	20 km N-E	mai 2001	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	100 ±	3
Grancey le Château	20 km N-E	mai 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	80 ±	2
Transplant Grancey le C	100 km S - W	mai 2001	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	100 ±	2,8
Transplant Grancey le C	100 km S - W	mai 2002	<i>E. prunastri</i> (2 échantillons)	fruticuleux	51,5 ±	4,3
Transplant Grancey le C	100 km S - W	mai 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	32,5 ±	4,3

Tableau 4 : Comparaison dans le temps : analyses des mêmes espèces de lichens sur les mêmes sites à plusieurs années d'intervalle et résultats d'analyses des transplants. Résultats exprimés en Bq.L⁻¹ d'eau de combustion.

Lieu	Distance de la source	Date	Espèce	Type	Activité Bq/L eau de combustion	
Retraitement						
La Hague 1	3 km intérieur terres	fev 1999	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	24,2 ±	1,3
La Hague 2	côte (4km)	fev 1999	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	20,5 ±	1,2
La Hague 1a	3 km intérieur terres	août 2003	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	13,3 ±	0,6
La Hague 2b	côte (4km)	août 2003	<i>R. siliquosa</i>	fruticuleux	7,8 ±	0,5
fond						
Morvan	fond	août 1998	<i>P. sulcata</i>	foliacé	3,1 ±	0,4
Digoin	fond	août 1999	<i>X. parietina</i>	foliacé	4,8 ±	0,4
Joncy	fond	mai 2002	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	7 ±	0,6
Vienna	fond	sep 2003	<i>X. parietina</i>	foliacé	5,1 ±	
Centrale nucléaire						
Bugey PWR	1 km E	juil 2003	<i>P. caperata</i>	foliacé	7,3 ±	1,4
Bugey PWR	1 km N	juil 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	12,3 ±	0,6
Installation militaire						
Etang de Valduc	1 km S-E	sep 2000	<i>E. prunastri (4 échantillons)</i>	fruticuleux	8470 ±	890
Etang de Valduc	1 km S-E	sep 2000	<i>P. sulcata</i>	foliacé	10996 ±	56
Salives	4 km N	sep 2000	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	6642 ±	40
Salives	4 km N	mai 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	4305 ±	56
Salives	5 km N	sep 2000	<i>P. sulcata</i>	foliacé	817 ±	10
Salives	5 km N	sep 2000	<i>X. parietina</i>	foliacé	1095 ±	12
Moloy	4 km S-E	fev 1997	<i>P. caperata</i>	foliacé	±	
Moloy	4 km S-E	sep 2000	<i>P. caperata</i>	foliacé	145 ±	5
Moloy	4 km S	sep 2000	<i>P. sulcata</i>	foliacé	210 ±	10

Moloy	4 km S	sep 2000	<i>P. sulcata</i>	foliacé	158 ±	5
Grancey le Château	20 km N-E	sep 2000	<i>X. parietina</i>	foliacé	37 ±	3
Grancey le Château	20 km N-E	sep 2000	<i>P. sulcata</i>	foliacé	126 ±	5
Grancey le Château	20 km N-E	sep 2000	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	157 ±	3
Grancey le Château	20 km N-E	mai 2001	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	100 ±	3
Grancey le Château	20 km N-E	mai 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	80 ±	2
		mai 2001	<i>Leptogium sp.</i>	gélatineux		
Langres	40 km N	juin 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	41 ±	3
Transplants						
Transplant Grancey le C	100 km S - W	mai 2001	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	100 ±	2,8
Transplant Grancey le C	100 km S - W	mai 2002	<i>E. prunastri</i> (2 échantillons)	fruticuleux	51,5 ±	4,3
Transplant Grancey le C	100 km S - W	mai 2003	<i>E. prunastri</i>	fruticuleux	32,5 ±	4,3

Tableau 5 : Récapitulatif de l'ensemble des analyses de tritium organiquement lié sur les lichens. Résultats exprimés en Bq.L⁻¹ d'eau de combustion (d'après Daillant *et al.* 2004 et 2003).