

Utilisation de la biosurveillance lichénique sur la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer : retour sur trois ans de suivi à l'échelle d'un territoire intercommunal

Biomonitoring with lichens in the industrialo-portuary zone of Fos-sur-Mer (France): Feedback on three years of monitoring at a local collectivity scale

Julien Dron^{1*}, Annabelle Austruy¹, Yannick Agnan¹, Aude Ratier¹, Philippe Chamaret¹

Résumé

La méthode de biosurveillance de la qualité de l'air par les lichens a été appliquée au territoire intercommunal du SAN Ouest-Provence qui abrite la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer et qui jouxte les complexes pétrochimiques du pourtour de l'étang de Berre. Ces travaux ont exploité les deux aspects offerts par la biosurveillance lichénique, à savoir le lien entre qualité de l'air et diversité lichénique d'une part (9 stations) et bioaccumulation des contaminants (métaux, HAP, dioxines/furanes) dans les thalles de *Xanthoria parietina*, d'autre part (20 stations).

Les observations effectuées indiquent une atteinte à la biodiversité lichénique lorsqu'on se rapproche des grands centres industriels locaux, celle-ci diminuant de 22 espèces en zone éloignée à 10 espèces (pour un Indice de Pureté Atmosphérique, IPA, allant de 99,5 à 42,7, respectivement). Inversement, les teneurs en contaminants mesurées dans *X. parietina* augmentent fortement avec la proximité industrielle, avec des rapports de concentrations atteignant un facteur 10 à 100 selon les polluants considérés. On dénote également une plus grande disparité des concentrations en polluants, pouvant s'expliquer par une plus grande dépendance vis-à-vis des conditions météo en zone industrielle, et notamment de vent. Ceci met l'accent sur la spécificité associée à l'aspect fixe, permanent et localisé (souvent canalisé) des émissions industrielles, qui contraste avec le caractère plus diffus, notamment des émissions urbaines, que ce soit pour le trafic routier ou le secteur résidentiel.

Ces travaux montrent la complémentarité des deux aspects de la biosurveillance lichénique et, ici encore, leur aptitude à mesurer les impacts des activités anthropiques sur la qualité de l'air. Ils révèlent aussi l'inadéquation de la réglementation appliquée par les industriels sur le suivi par biosurveillance, qui se cantonne généralement au voisinage immédiat de leurs installations. Ils pointent au contraire le besoin d'une surveillance intégrée sur un territoire défini de manière cohérente avec son usage et ses spécificités et incluant les zones d'habitation qui doivent même figurer au centre de la biosurveillance atmosphérique.

Mots-clés

bioindication, bioaccumulation, lichen, HAP, dioxines/furanes, métaux, zone industrialo-portuaire.

(*) julien.dron@institut-ecocitoyen.fr

(1) Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions, Centre de Vie La Fossette RD 268, 13270 Fos-sur-Mer.

Abstract

Biomonitoring air quality using lichens has been applied to the SAN Ouest-Provence collectivity territory which hosts the industrialo-portuary zone of Fos-sur-Mer and which edges the petrochemical complexes of the Berre Lagoon. This work took advantage of the two aspects offered by the biomonitoring with lichens, i.e. the relation between lichen diversity and air quality on one hand (9 stations), and contaminant (metals, PAHs, dioxins and furans) bioaccumulation in the thalli of *Xanthoria parietina* on the other hand (20 stations).

The observations indicate that the lichen diversity is affected when approaching the industrial centers, decreasing from 22 species in the most remote stations investigated to 10 species (with corresponding IAP decreasing from 99.5 to 42.7, respectively). On the contrary, the contaminants concentrations increase drastically with the vicinity of the industries, with concentration ratios of 10 to 100 according to the pollutant under consideration. A greater disparity was also observed for the contaminant concentrations, potentially due to a larger dependence to meteorological conditions, wind in particular, in the industrial zones. This highlights the specificity associated to the fixed, permanent and concentrated (often canalized) aspects of the industrial emissions which contrast with the particularly more dispersed characteristic of the urban emissions, in terms of road traffic as well as residential emissions.

This study emphasizes the complementarity of the two aspects of biomonitoring with lichens and again their ability to measure the impacts of the anthropic activities on air quality. It also reveals the incompatibility of the current regulations applied by the industrials, which generally remains limited to the immediate vicinity of their installations. On the contrary, it points out the needs of an integrated monitoring, established on a perimeter according to its land-use and its specificities and including the residential areas which should even figure as the center of the air quality biomonitoring.

Keywords

bioindication, bioaccumulation, lichen, PAH, dioxins/furans, metals, industrialo-portuary zone.

1. Introduction

Les pourtours de l'étang de Berre et du golfe de Fos sont un territoire marqué par de fortes pressions environnementales, dont les effets potentiels sur la santé humaine suscitent de constantes interrogations au sein de la population. Il compte notamment près de 70 sites industriels, dont 27 sont classés SEVESO, répartis sur les sites de Fos-sur-Mer (zone industrialo-portuaire de Fos) et Lavéra (port et complexe pétrochimique), distants d'une quinzaine de kilomètres. Ils couvrent au total près de 20 000 ha et accueillent de nombreuses industries lourdes dans les domaines du raffinage, de la pétrochimie et de la sidérurgie, ainsi que deux incinérateurs de déchets, auxquelles s'ajoute l'activité portuaire du plus important port de commerce français. De fait, il s'agit d'une zone urbanisée exposée aux émissions industrielles et aux trafics routier et maritime. Cependant, peu de données concernant l'état environnemental de la zone sont aujourd'hui disponibles. Si la réglementation impose la réalisation d'une biosurveillance autour des installations classées pour l'environnement, confiant aux exploitants le choix de la méthode de suivi (lichens, ray-grass, espèces marines...), il n'existe toutefois pas de mise en commun de ces données. La connaissance qui en résulte se fonde donc sur des mesures disparates, autant d'un point de vue méthodologique que géographique, qui ne permettent pas de quantifier l'effet cumulé des émissions. De plus, aucun suivi n'est réalisé dans les zones d'habitation alentour, rendant particulièrement difficile l'étude de liens entre ces suivis environnementaux et un éventuel impact sanitaire pour les populations.

L'Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions (IECP) présente ici les résultats d'une biosurveillance lichénique complète sur un territoire intégrant la zone industrialo-portuaire de Fos et Lavéra ainsi que les villes alentour. Les lichens, symbioses entre un champignon et une algue ou une cyanobactérie, ont pour principales sources d'éléments nutritifs les apports atmosphériques et peuvent ainsi être sensibles aux polluants atmosphériques métalliques et organiques (Van Haluwyn et Lerond, 1993 ; Conti et Cecchetti, 2001 ; Augusto *et al.*, 2009). Ils sont considérés comme des bio-indicateurs de la qualité de l'air pertinents et ont largement été utilisés pour mesurer l'exposition des écosystèmes terrestres aux métaux traces ou à divers composés organiques tels que les PCB (polychlorobiphényles), les HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) ou les dioxines en utilisant leur qualité de bio-accumulateurs de polluants atmosphériques (Guidotti *et al.*, 2003 ; Giraudeau, 2009 ; Denys et Gombert, 2009 ; Llop *et al.*, 2012 ; Agnan, 2013 ; Shukla *et al.*, 2013). De même, la diversité lichénique est utilisée comme un indicateur pour surveiller les effets de la pollution de l'air dans les zones urbaines ou industrielles (Van Haluwyn et Lerond, 1986 ; Stamenkovic *et al.*, 2010). Cette dernière modifie les communautés de lichens, qui se traduit, selon la nature et la concentration des polluants, par un appauvrissement en termes de richesse et d'abondance (Llop *et al.*, 2012).

Les travaux de biosurveillance lichénique présentés ici s'articulent autour de relevés de flore lichénique

épiphyte réalisés entre 2014 et 2015, et de prélèvements de thalles de *Xanthoria parietina* (L.) Th. Fr. effectués une fois par an sur la période 2011-13 pour mesurer la bio-accumulation des polluants. Les analyses conduites sur ces prélèvements concernent 17 métaux/métalloïdes, les 16 HAP listés par l'USEPA et les dioxines et furanes (PCDD/F) listés par l'OMS. La complémentarité des deux approches est ainsi utilisée pour améliorer la connaissance de l'état environnemental de ce territoire.

2. Matériels et méthodes

2.1. Choix des stations d'observations et de prélèvements

La zone d'étude a d'abord été centrée sur la zone industrialo-portuaire de Fos et sur les villes voisines (Port-Saint-Louis-du-Rhône et Fos-sur-Mer), comme le montre la figure 1. Les centres-villes d'Istres et de Miramas, ainsi qu'un site au sud-est de Fos-sur-Mer (Engrenier), ont également été pris en compte dès 2011 afin d'examiner l'impact de la ZIP

sur des zones urbaines plus éloignées. Une station située au sein de la réserve naturelle nationale des marais du Vigueirat a également été choisie afin de constituer un site dit de référence locale, éloignée de tout centre urbain et axe routier et distante de 16 km du centre de la ZIP.

Les années suivantes ont vu s'étendre la zone d'étude vers des communes plus éloignées (Grans et Cornillon en 2012) et autour du complexe pétrochimique de Lavéra en 2013 (Lavéra, Port-de-Bouc et Martigues), pour atteindre un total de 20 stations. Ces extensions ont eu pour objectifs respectifs d'analyser l'influence éventuelle des zones industrielles locales au-delà de 10 km sur la bio-accumulation des polluants et la diversité lichénique, et de mesurer l'impact du deuxième grand centre industriel à proximité de Fos-sur-Mer. Les stations sont listées dans le tableau I, regroupées selon le type d'environnement qui les caractérise : (i) les stations situées dans la ZIP de Fos ou sur le complexe pétrochimique de Lavéra, (ii) les stations situées dans les villes voisines de la ZIP et (iii) les stations situées à plus de 10 km du centre de la ZIP ou de Lavéra (tableau I).

Tableau I. Stations d'étude, regroupées selon leur environnement, et leur distance aux principaux centres industriels autour de Fos-sur-Mer définis comme la ZIP de Fos (centrée sur le complexe sidérurgique) et Lavéra.

Stations under study, listed according to their typology, and their distances to the main industrial centers around Fos-sur-Mer, defined as the industrialo-portuary zone of Fos (centered on its steel industry complex) and Lavera.

| Nom de la station | Code | Distance (km) | Type | Commune |
|-------------------|------|---------------|--------------------|------------------|
| Gloria | GLO | 6,0 | Industriel | Port-Saint-Louis |
| Caban | CAB | 4,0 | Industriel | Port-Saint-Louis |
| Tonkin | TON | 5,0 | Industriel | Fos-sur-Mer |
| Salins | SAL | 5,5 | Industriel | Port-Saint-Louis |
| La Fossette | LAF | 6,0 | Industriel | Fos-sur-Mer |
| Audience | AUD | 3,5 | Industriel | Fos-sur-Mer |
| Cavaou | CAV | 2,0 | Industriel | Fos-sur-Mer |
| Lavéra | LAV | 2,0 | Industriel | Martigues |
| Port-Saint-Louis | PSL | 7,5 | Ville prox. Indus. | Port-Saint-Louis |
| Fos-Carabins | FOS1 | 5,0 | Ville prox. Indus. | Fos-sur-Mer |
| Fos-Mazet | FOS2 | 6,5 | Ville prox. Indus. | Fos-sur-Mer |
| Fos-Oliviers | FOS3 | 5,0 | Ville prox. Indus. | Fos-sur-Mer |
| Engrenier | ENG | 5,5 | Ville prox. Indus. | Fos-sur-Mer |
| Port-de-Bouc | PDB | 3,5 | Ville prox. Indus. | Port-de-Bouc |
| Martigues | MAR | 4,5 | Ville prox. Indus. | Martigues |
| Istres | IST | 11 | Ville > 10 km | Istres |
| Miramas | MIR | 20 | Ville > 10 km | Miramas |
| Grans | GRA | 25 | Ville > 10 km | Grans |
| Cornillon | COR | 21 | Ville > 10 km | Cornillon |
| Vigueirat | VIG | 16 | Naturel > 10 km | Arles |

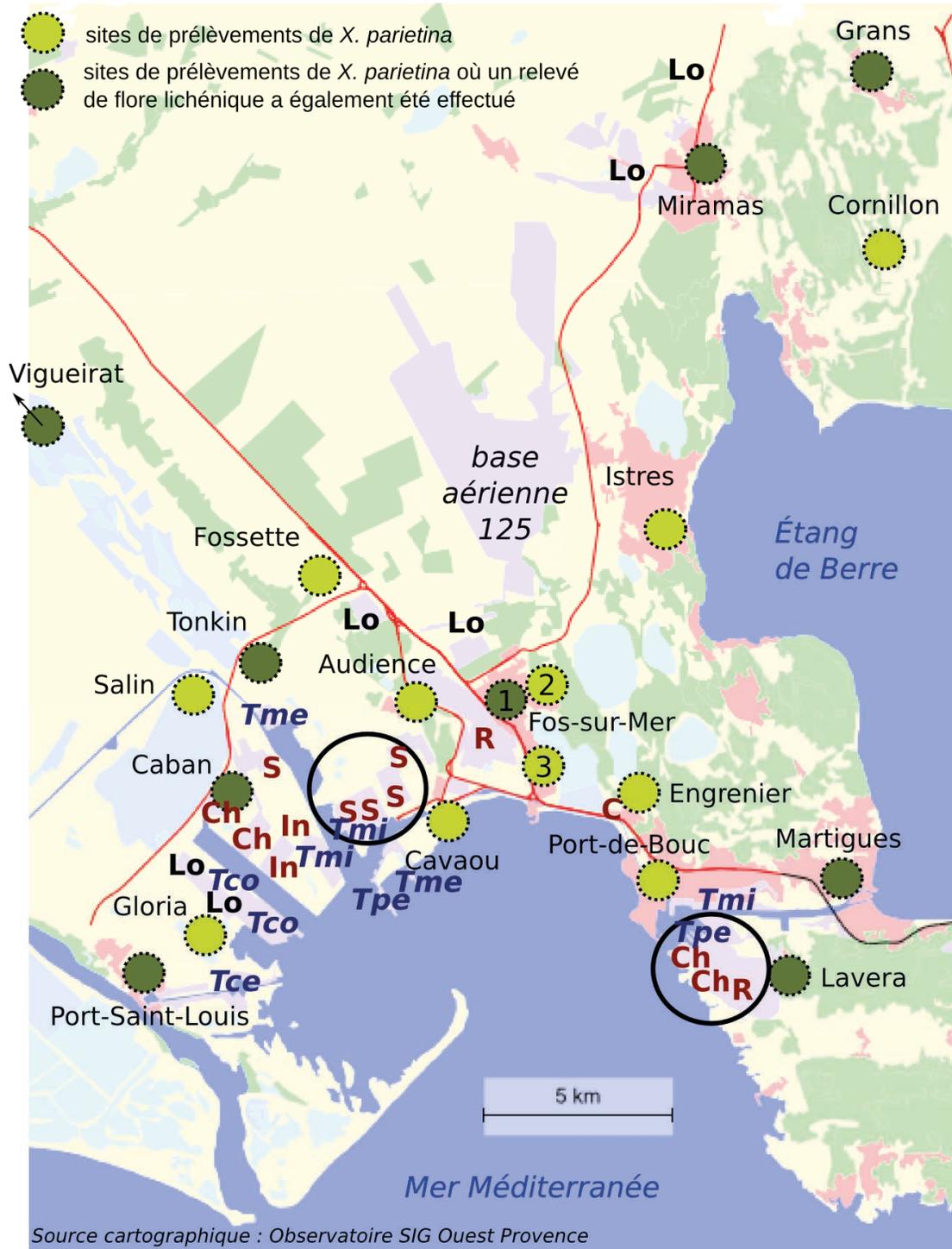


Figure 1. Zone d'étude, principales activités industrielles et localisation des sites de prélèvements de *X. parietina*. Les cercles noirs représentent le complexe sidérurgique ArcelorMittal Méditerranée (défini ici comme le centre de la ZIP de Fos) et le complexe pétrochimique de Lavéra.

Map of the studied region with its principal industrial activities and localization of the *X. parietina* sampling sites. The black circles indicate the ArcelorMittal steel industry complex (defined as the center of the industrialo-portuary zone of Fos), and the petrochemical complex of Lavera.

Activités industrielles : R = raffinerie ; S = sidérurgie ; Ch = pétrochimie/chimie ; In = incinérateur ; C = cimenterie ; Lo = logistique

Terminaux portuaires : Tpe = pétroliers ; Tme = méthaniers ; Tmi = minéraliers ; Tco = containers ; Tce = céréaliers

Port terminals: Tpe = oil; Tme = gaz; Tmi = minerals; Tco = containers; Tce = cereals

Industrial activities: R = oil refinery; S = steel industry; Ch = petrochemical; In = incineration; C = cement plant; Lo = rail and road logistic

2.2. Biodiversité lichénique

Parmi les 20 stations étudiées, 9 ont fait l'objet de relevés de la diversité lichénique corticole (3 industrielles, 3 en proche périphérie et 3 plus éloignées ; figure 1) entre 2014 et 2015. Ils ont été réalisés suivant les principes énoncés par la norme NF X 43- 903 (2008).

L'échantillonnage a été effectué sur 10 arbres (appelés phorophytes), exclusivement des feuillus, en diversifiant les espèces d'arbres, afin d'optimiser la représentativité de la diversité lichénique (Poličnik *et al.*, 2008). Le choix des arbres est basé sur leur diamètre (< 30 cm) et leur inclinaison (< 10 °). Le relevé est effectué sur les quatre faces de chaque arbre à l'aide d'une grille d'observations composée de cinq mailles de 10 × 10 cm superposées verticalement. La grille est placée à au moins 1 m de hauteur pour éviter toute perturbation du sol. Pour déterminer la fréquence de chaque espèce lichénique, on note leur présence éventuelle dans les différentes mailles de la grille d'observations, soit une fréquence allant de 0 (espèce absente) à 5 (espèce présente dans toutes les mailles). Ces fréquences sont indiquées pour chaque face de l'arbre sur une fiche de terrain, qui mentionne aussi les coordonnées géographiques des phorophytes, et certaines observations climatiques (e.g. météo, vent, température).

La détermination lichénique a été réalisée en laboratoire par observation à la loupe binoculaire (grossissement 5× à 40×, Leica S6D), et au microscope (de 50× à 400×, Zeiss LabA1) à l'aide de guides de détermination de référence (Clauzade et Roux, 1985 ; Tiévant, 2001 ; Smith *et al.*, 2009 ; Dobson, 2011 ; Van Haluwyn et Lerond, 2013), et de tests chimiques (potasse - test K, hypochlorite de sodium - test C et paraphénylènediamine - test P).

Pour chacune des 9 stations étudiées, la richesse en espèces (nombre d'espèces de lichens) a été reportée, et l'Indice de Pureté Atmosphérique (IPA), mis en place par Leblanc et Sloover (1970), a été calculé. Celui-ci est déterminé à partir de la formule suivante (1) :

$$IPA = \frac{1}{10} \times \sum_{i=1}^n (Q_i \times f_i) \quad (1)$$

Avec :

i = espèce lichénique

n = nombre total d'espèces dans la station

Q_i = indice écologique de l'espèce i

f_i = coefficient de recouvrement de l'espèce i (de 1 : rare, à 5 : abondante, correspondant aux quartiles et à > 50 % pour la dernière borne selon la méthode proposée par Agnan (2013))

2.3. Prélèvements et analyses de *X. parietina*

Des thalles entiers de lichens *X. parietina* ont été prélevés sur tronc dans des parcelles de 200 m² environ par la société AairLichens (Giraudeau, 2009) dans le but d'y mesurer les métaux et métalloïdes, les HAP (liste USEPA) et les PCDD/F (liste OMS pour le calcul de l'ITEQ). L'espèce *X. parietina* a été choisie du fait de sa présence et de sa forte abondance sur l'ensemble des stations. Les échantillons ont été collectés sur différents phorophytes feuillus (principalement frênes, chênes verts et tamaris), jusqu'à constituer un échantillon composite représentatif de la station, de 10 à 15 g environ, immédiatement conservé à 4 °C. Après nettoyage des thalles sous loupe binoculaire pour retirer les fragments d'écorces, les espèces non souhaitées et autres poussières, les échantillons ont été séchés en étuve à 40 °C pendant 24 h, puis congelés à -20 °C. Les analyses ont été effectuées par le Laboratoire CARSO de Lyon (certifié COFRAC) pour l'ensemble des échantillons.

Les 16 HAP ont été analysés par GC-MS-MS à l'aide d'étalons deutérés, et les PCDD/F par HRGC-MS (Autospec ULTIMA, Waters) selon les normes NF EN 1948-2 et -3. Les métaux/métalloïdes ont été analysés par ICP-AES pour l'aluminium (Al), le chrome (Cr), le cuivre (Cu), le fer (Fe), le manganèse (Mn), le nickel (Ni), le plomb (Pb), le vanadium (V) et le zinc (Zn), et par ICP-MS pour l'arsenic (As), le mercure (Hg), le cadmium (Cd), l'argent (Ag), le cobalt (Co), l'antimoine (Sb), l'étain (Sn) et le thallium (Tl) après minéralisation par HF en micro-ondes. Les analyses de Hg respectent la norme NF EN 13211, et celles de l'ensemble des autres métaux et métalloïdes la norme NF EN 14385.

2.4. Analyses statistiques

L'interprétation de l'ensemble des résultats (bio-indication et bio-accumulation), et notamment les analyses statistiques, a été réalisée au moyen du logiciel R (R Core Team, 2015).

Les résultats des tests de Mann-Whitney et les coefficients de corrélation (Pearson) sont toujours donnés pour un intervalle de confiance $\alpha = 0,95$.

Les Analyses en Composantes Principales (ACP) ont porté sur les données centrées réduites (soit X_j pour les données x_j d'une variable x sur l'ensemble des j stations) suivant la méthode couramment utilisée et faisant appel à l'équation suivante :

$$X_j = \frac{x_j - \bar{x}}{\sigma(x)} \quad (2)$$

où, \bar{x} est la valeur moyenne de la variable x et $\sigma(x)$ son écart-type.

Les valeurs sont considérées égales à 0 lorsqu'un contaminant n'est pas détecté. Dans le cas de la variable IPA pour laquelle certaines stations ne bénéficient pas de mesures propres (valeurs manquantes), c'est la valeur moyenne sur l'ensemble des autres stations qui a été considérée afin de limiter leur incidence sur l'ACP.

3. Résultats

3.1. Bioindication lichénique de la zone de Fos-sur-Mer

3.1.1. Diversité lichénique

Les relevés lichéniques effectués sur 9 stations de la zone d'étude, équitablement réparties selon leurs expositions supposées (figure 1) montrent une diversité globale de 37 espèces. On dénombre 23 espèces à thalle crustacé, 13 à thalle foliacé et 1 à thalle fruticuleux (tableau II).

L'espèce la plus abondante est *X. parietina* (67,4 % de recouvrement en moyenne), espèce nitrophile, héliophile et toxitolérante (Augusto *et al.*, 2009 ; Van Haluwyn *et al.*, 2013). Les espèces *Physcia adscendens* et *Hyperphyscia adglutinata* sont également présentes sur l'ensemble des stations, mais avec une abondance plus faible que *X. parietina* (56,6 % et 55,1% de recouvrement, respectivement). Ces espèces sont caractéristiques des milieux fortement perturbés et anthropisés (Llop *et al.*, 2012 ; Paoli *et al.*, 2014).

Les stations sont caractérisées par une majorité d'espèces lichéniques à thalles crustacés (excepté pour FOS-1 et GRA), généralement résistantes à une forte pollution atmosphérique (Van Haluwyn *et al.*, 2013). Une seule espèce de lichen fruticuleux (*Evernia prunastri*), parmi celles considérées comme les plus sensibles à la pollution atmosphérique (Van Haluwyn *et al.*, 2013), a été retrouvée sur la zone d'étude, dans la station de Port-Saint-Louis-du-Rhône (PSL). D'après Van Haluwyn *et al.* (2013), la présence de cette espèce désigne une zone de pollution moyenne.

La biodiversité lichénique varie entre 10 et 22 espèces selon la station (figure 2), avec une moyenne de 16 espèces par site. Les stations les plus excentrées de la ZIP (> 10 km) présentent la plus grande diversité avec une moyenne de 20 espèces par station, et une biodiversité maximale de 22 espèces relevées sur la station de référence du Vigueirat (VIG). Inversement, les stations situées au cœur de la ZIP, et plus particulièrement la station de Lavéra (LAV) située à proximité d'un complexe pétrochimique, présentent

la biodiversité la plus faible avec une moyenne de 12 espèces par station sur l'ensemble de la ZIP et seulement 10 espèces à Lavéra.

La diversité lichénique enregistrée sur les stations résidentielles situées à moins de 10 km de la ZIP est intermédiaire à celle mesurée au sein de la ZIP et à celle des sites éloignés, avec 16 espèces en moyenne par station. Malgré l'hétérogénéité des données, en particulier en périphérie de la ZIP, la répartition géographique de ces résultats témoigne d'un impact significatif des zones de Fos/Lavéra sur la biodiversité lichénique (Mann-Whitney, $p = 0,03$ entre les stations distantes de plus de 10 km et celles de la ZIP).

Par ailleurs, certains traits fonctionnels évoluent en fonction de la situation géographique des stations, avec notamment une augmentation en fréquence des espèces acidophiles (*Chrysothrix candelaris*, *Arthonia radiata* et *Parmelina tilacea*) avec l'éloignement à la ZIP, phénomène déjà observé dans une étude menée à proximité d'une cimenterie en Slovaquie (Paoli *et al.*, 2014). En effet, les activités industrielles, et notamment la sidérurgie ou la cimenterie, sont émettrices de poussières alcalines. Celles-ci peuvent être à l'origine d'une élévation du pH de l'écorce des arbres situés dans un périmètre de 250 à 1 000 m autour de l'usine (Branquinho *et al.*, 2008) et ainsi faciliter l'implantation d'espèces basophiles. De même, une augmentation des espèces toxitolérantes (*Amandinea punctat*, *Xanthoria parietina*, *Diploicia canascens*), résistantes aux pollutions atmosphériques, est observée sur les stations situées dans la ZIP ou dans un rayon de 10 km autour du complexe industrialo-portuaire.

La diversité et l'écologie des lichens mettent donc en évidence l'altération de l'environnement par les émissions anthropiques, qui est d'autant plus importante à proximité des centres industriels.

3.1.2. Détermination de l'Indice de Pureté Atmosphérique (IPA)

Les valeurs des IPA de la zone d'étude varient entre 42,7 et 99,5 (figure 2) et l'indice écologique Q_i de chaque espèce est compris entre 13 (*Caloplaca pyracea*) et 21 (*Caloplaca luteoalba*, *Lecania sp.* et *Alyxoria varia*).

Sur l'ensemble des sites étudiés, seules les stations situées dans la ZIP possèdent des IPA correspondant à une pollution atmosphérique faible ($45 < IPA < 60$) selon l'échelle de Kricke et Loppi (2002). La station de Lavéra (LAV) a le plus faible IPA relevé sur la zone d'étude ($IPA = 42,7$). Les sites situés en périphérie de la ZIP ont un IPA qui varie de 60,6 (PSL) à 75,6 (FOC), valeurs intermédiaires entre celles calculées pour les

Tableau II. Liste des espèces lichéniques rencontrées sur les sites d'études et leurs fréquences d'apparitions correspondantes.

List and corresponding frequencies of the lichen species found in the studied stations.

| Espèces | Stations | | | | | | | | |
|--|----------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| | CAB | TON | LAV | PSL | FOC | MAR | MIR | GRA | VIG |
| Thalle crustacé | | | | | | | | | |
| <i>Acrocordia gemmata</i> (Ach.) A. Massal. | | 0,10 | | 0,43 | 0,14 | | 0,18 | 0,15 | |
| <i>Alyxoria varia</i> (Pers.) Ertz et Tehler | | | | | | | | | 0,28 |
| <i>Amandinea punctata</i> (Hoffm.) Coppins et Scheid. | 0,16 | 0,03 | 0,07 | 0,20 | 0,24 | 0,03 | 0,11 | 0,25 | |
| <i>Anisomeridium bifforme</i> (Borrer) RC Harris | 0,66 | | 0,76 | | | 0,13 | 0,05 | 0,01 | 0,32 |
| <i>Arthonia atra</i> (Pers.) | | 0,12 | | | | 0,07 | | 0,07 | 0,13 |
| <i>Arthonia punctiformis</i> Ach. | | | | 0,02 | 0,02 | | | | 0,01 |
| <i>Arthonia radiata</i> (Pers.) Ach. | | | | | | | 0,01 | | 0,01 |
| <i>Buellia griseovirens</i> (Turner et Borrer ex Sm.) Almb. | | | | | | 0,19 | | | |
| <i>Caloplaca cerina</i> (Ehrh. ex Hedw.) Th. Fr. | | | | 0,06 | 0,18 | 0,08 | 0,04 | 0,04 | |
| <i>Caloplaca ferruginea</i> (Huds.) Th. Fr. | | 0,10 | | | | | 0,10 | 0,10 | |
| <i>Caloplaca luteoalba</i> (Turner) Th. Fr. | | | | | | | | | 0,09 |
| <i>Caloplaca pyracea</i> (Ach.) Th. Fr. | 0,07 | | 0,15 | | | 0,04 | 0,40 | | |
| <i>Chrysothrix candelaris</i> (L.) J. R. Laundon | | | 0,03 | | | | | | 0,04 |
| <i>Cliostomum griffithii</i> (Sm.) Coppins | | 0,04 | | | 0,40 | | | | 0,16 |
| <i>Diploicia canescens</i> (Dicks.) A. Massal. | | 0,14 | | | | | | | 0,06 |
| <i>Diplotomma alboatrum</i> (Hoffm.) Flot. | | | | 0,02 | | | | | |
| <i>Lecania sp.</i> | | | | | | | | | 0,05 |
| <i>Lecanora carpinea</i> (L.) Vain. | 0,02 | | | | | | 0,06 | | |
| <i>Lecanora chlarotera</i> Nyl. | 0,06 | | | 0,03 | 0,04 | 0,20 | 0,04 | 0,15 | 0,03 |
| <i>Lecanora hagenii</i> (Ach.) Ach. | | 0,04 | | | | | | | |
| <i>Lecidella elaeochroma</i> (Ach.) M. Choisy | 0,03 | 0,04 | | 0,04 | 0,01 | 0,51 | 0,08 | 0,11 | 0,20 |
| <i>Lepraria incana</i> (L.) Ach. | 0,01 | | | 0,02 | | | | | 0,03 |
| <i>Naetrocymbe punctiformis</i> (Pers.) RC Harris | | | 0,16 | | | | 0,22 | | 0,09 |
| Thalle foliacé | | | | | | | | | |
| <i>Candelaria concolor</i> (Dicks.) Stein | 0,07 | | | | 0,09 | 0,03 | 0,10 | 0,82 | |
| <i>Flavoparmelia caperata</i> (L.) Hale | | 0,01 | | 0,01 | 0,06 | | 0,03 | | |
| <i>Flavoparmelia soledians</i> (Nyl.) Hale | | | | | | 0,04 | | 0,08 | 0,08 |
| <i>Hyperphyscia adglutinata</i> (Flörke) H. Mayrhofer et Poelt | 0,29 | 0,77 | 0,37 | 0,24 | 0,57 | 0,20 | 0,96 | 0,85 | 0,71 |
| <i>Parmelina tiliacea</i> (Hoffm.) Hale | | | | | | | | 0,01 | 0,01 |
| <i>Phaeophyscia orbicularis</i> (Neck.) Moberg | | | | 0,02 | 0,05 | | 0,27 | 0,73 | 0,14 |
| <i>Physcia adscendens</i> (Fr.) H. Olivier | 0,31 | 0,50 | 0,29 | 0,44 | 0,49 | 0,55 | 0,87 | 0,81 | 0,83 |
| <i>Physcia aipolia</i> (Ehrh. ex Humb.) Fürnr. | 0,13 | | | | 0,01 | | | 0,02 | |
| <i>Physcia biziana</i> (A. Massal.) Zahlbr. | | 0,21 | 0,09 | 0,20 | 0,45 | 0,16 | 0,16 | 0,43 | |
| <i>Physconia grisea</i> (Lam.) Poelt | | 0,06 | | 0,23 | 0,24 | | 0,31 | 0,07 | 0,12 |
| <i>Punctelia borreri</i> (Sm.) Krog | | 0,02 | | | | 0,02 | | 0,09 | 0,01 |
| <i>Xanthoria candelaria</i> (L.) Th. Fr. | | | 0,01 | | 0,06 | 0,05 | | 0,41 | 0,28 |
| <i>Xanthoria parietina</i> (L.) Th. Fr. | 0,63 | 0,95 | 0,32 | 0,68 | 0,50 | 0,31 | 0,98 | 0,87 | 0,83 |
| Thalle fruticuleux | | | | | | | | | |
| <i>Evernia prunastri</i> (L.) Ach. | | | | 0,01 | | | | | |

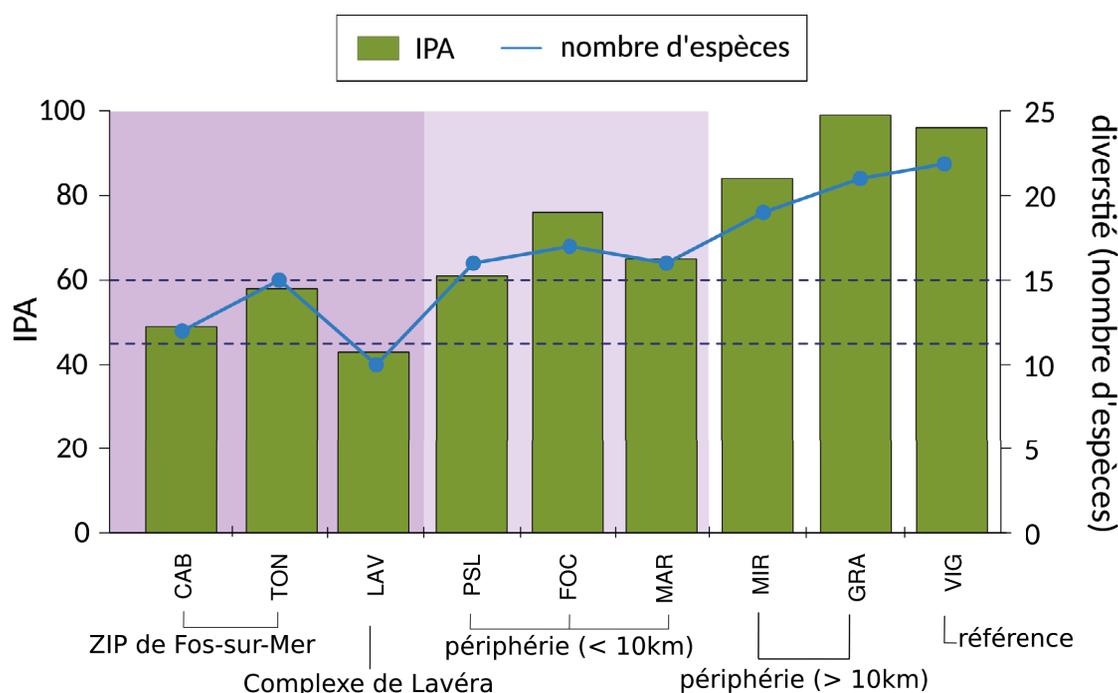


Figure 2. Diversités lichéniques mesurées dans les 9 stations d'étude et IPA correspondantes, situées en zone industrielle (fond foncé), en périphérie (fond clair) et plus éloignées (fond blanc).

Lichen diversities measured in the 9 stations under study and their corresponding IAP, located within an industrial zone (dark background), in their outskirts (clear background) and more remote (white background).

stations au sein de la ZIP et les stations éloignées. Enfin, les sites les plus distants de la ZIP (> 10 km) ont un IPA qui varie entre 84,1 (VIG) et 99,5 (GRA). Une différence significative (Mann-Whitney, $p < 0,05$) est observée entre les IPA des 3 stations à proximité des centres industriels ($IPA_{moy} = 50,0 \pm 7,5$) et ceux des 3 stations les plus éloignées ($IPA_{moy} = 93,2 \pm 7,9$).

Ainsi, la bio-indication lichénique, avec la détermination des cortèges lichéniques et l'évaluation de l'IPA, a pu mettre en évidence une altération de la qualité de l'air dans les zones urbaines et industrielles, parfois densément peuplées, situées à moins de 10 km de la ZIP.

3.2. Mesures de bio-accumulation de *X. parietina* sur la période 2011-13

3.2.1. Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP)

Les concentrations mesurées en HAP dans les thalles de *X. parietina* sont hétérogènes d'une station à l'autre, avec un rapport entre la station la plus exposée et la station la moins exposée qui atteint 14 en 2011, puis 23 en 2012, pour redescendre à 8 en 2013. La variabilité est particulièrement marquée pour les

stations situées en zone industrialo-portuaire, avec des teneurs en HAP globalement comprises entre 300 et 3 000 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (figure 3a). Si l'on excepte le cas particulier de Port-Saint-Louis-du-Rhône (1 165 à 2 034 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$), les valeurs rencontrées dans les villes au voisinage de la ZIP sont élevées mais présentent moins de disparités avec des concentrations allant de 237 à 620 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. Enfin, les concentrations dans les sites plus éloignés sont plus homogènes et généralement moins élevées que celles des stations périphériques, avec des valeurs comprises entre 108 et 374 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$.

L'impact de certaines activités industrielles locales semble se traduire à la fois au niveau des teneurs totales en HAP et sur la variabilité. La figure 3a montre le lien entre teneurs en HAP et proximité des sites industriels. Les émissions industrielles dans la ZIP Fos et Lavéra sont multiples, fixes et souvent canalisées au travers de cheminées pouvant atteindre 120 m de hauteur. Ainsi, les panaches peuvent affecter de manières très différentes deux stations pourtant géographiquement proches. La variabilité des teneurs en HAP des stations en zone industrielle peut donc s'expliquer par les conditions micro-météorologiques, ainsi que l'environnement proche des stations (couvert végétal, bâtiments, nature des émissions...). Les variations interannuelles sont en revanche nettement

plus limitées, le rapport entre année la plus forte et année la plus faible étant en moyenne de 1,6. Ce facteur varie entre 1,2 (FOS-2) et 2,6 (VIG), et seulement 3 stations ont vu leurs teneurs en HAP varier d'un facteur supérieur à 2 au cours des 3 années de suivi (VIG : 2,6 ; CAB : 2,2 ; AUD : 2,1). On peut remarquer sur la figure 3a que l'année 2012 a connu une baisse sur l'ensemble des stations à l'extérieur des zones industrielles à l'exception de Port-Saint-Louis-du-Rhône (PSL). La plupart d'entre elles, cependant, ont ensuite dépassé en 2013 les valeurs de 2011. Les variations interannuelles des stations en zone industrielle ne vont pas nécessairement dans le même sens, traduisant encore la forte variabilité de l'accumulation en HAP par les lichens dans ce type d'environnement. On peut toutefois noter, en 2013, l'absence de valeurs supérieures à $1\,400\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ conduisant à un moindre écart entre stations industrielles et périphériques.

Peu de documentation témoigne de l'imprégnation des thalles de *X. parietina* en HAP. La mesure des HAP dans les lichens est relativement peu référencée, et les espèces considérées par ces études sont très disparates, or l'espèce peut avoir une incidence élevée sur l'accumulation de polluants (Nimis *et al.*, 2001 ; Augusto *et al.*, 2009 et 2013 ; Schrlau *et al.*, 2011). En milieu urbain, Augusto *et al.* (2010) indique des niveaux en HAP dans les thalles de *X. parietina* compris entre 167 et $256\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ en zones urbaine et industrielle, respectivement (Sétubal, Portugal), et Domeño *et al.* (2006) environ $340\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ en zone urbaine (Saragosse, Espagne), soit des niveaux comparables à ceux retrouvés dans la présente étude pour les stations les plus éloignées des sites industriels (en dehors des centres urbains pour VIG, GRA, COR). La station de référence (VIG) au sein de la réserve naturelle nationale du Vigueirat présente, par exemple, des concentrations en HAP allant de 108 à $277\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ selon les années. Elle présente généralement le niveau le plus bas mesuré et constitue une référence locale intéressante car éloignée d'au moins $15\ \text{km}$ de toute influence urbaine, industrielle ou routière.

3.2.2. Dioxines et furanes (PCDD/F)

Les mesures en dioxines et furanes (PCDD/F, polychlorodibenzodioxines et polychlorodibenzofuranes), exprimées en équivalents toxiques (ITEQ, OMS-1998) sont représentées sur la figure 3b. Les niveaux rencontrés pour les 20 stations étudiées sur les 3 années de suivi sont relativement stables, et compris entre $1,1$ et $27\ \text{ng}_{\text{ITEQ}}\cdot\text{kg}^{-1}$. Comme dans le cas des HAP, une plus grande disparité des concentrations dans les thalles de *X. parietina* prélevés au sein des zones industrielles est retrouvée, avec notamment deux stations dépassant $10\ \text{ng}_{\text{ITEQ}}\cdot\text{kg}^{-1}$ (CAB en 2011,

2012, 2013 et SAL en 2013). Elles sont toutes les deux situées dans le secteur du Caban et témoignent d'un impact local des activités industrielles à proximité. Toutefois, le nombre important de sites industriels émetteurs de dioxines (deux incinérateurs, une aciérie, un complexe sidérurgique) ne permet pas d'identifier la ou les sources des PCDD/F accumulés dans ces lichens. Les niveaux mesurés en périphérie avoisinante et éloignée des zones industrielles sont légèrement inférieurs à ceux des sites industriels compris entre $1,5$ et $4,0\ \text{ng}_{\text{ITEQ}}\cdot\text{kg}^{-1}$ pour la plupart.

Les évolutions interannuelles sont limitées en intensité ; le rapport entre années les plus fortes et années les plus faibles vont de $1,0$ à $1,8$ pour toutes les stations, exceptée celle des Salins (SAL : $6,8$). Ces variations sont comparables à celles observées pour les HAP des stations périphériques, avec une légère baisse en 2012 par rapport à 2011, puis une augmentation en 2013 qui atteint des niveaux les plus élevés depuis le début du suivi (figure 3b).

Les résultats de mesures des PCDD/F dans les lichens sont particulièrement rares dans la littérature (Augusto *et al.*, 2004 et 2009 ; Giraudeau, 2009 ; Denys et Gombert, 2009). Ils sont toutefois cohérents avec les mesures réalisées depuis 15 ans par Giraudeau (2009) autour d'incinérateurs à ordures ménagères ou en site reculé. D'autre part, Augusto *et al.* (2004, 2009) présentent des résultats de mesures de PCDD/F dans les thalles de *X. parietina* plus élevés, compris entre 73 et $1\,913\ \text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ (en moyenne $428\ \text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$) dans des zones densément peuplées et industrialisées (péninsule de Sétubal, Portugal). Pour comparaison, les résultats obtenus dans la zone de Fos-sur-Mer varient entre $29\ \text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ (VIG en 2011) et $851\ \text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ (SAL en 2013). Cela indique des niveaux parfois élevés dans la ZIP de Fos et Lavéra, mais qui semblent décroître rapidement avec l'éloignement. La valeur médiane pour la présente étude est comprise entre 69 et $74\ \text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ pour un total de 50 mesures sur l'ensemble du suivi 2011-2013 dans la zone de Fos-sur-Mer. La moyenne des concentrations relevées varie entre 110 et $150\ \text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ selon les années, augmentée par les stations les plus impactées (CAB en 2011, 2012, 2013, SAL et LAV en 2013), ne trouvant donc pas de signification ici.

3.2.3. Métaux et métalloïdes

De manière générale, la variabilité entre les valeurs des concentrations en métaux/métalloïdes mesurées dans les thalles de *X. parietina* est inférieure à celle des HAP ou des PCDD/F. Comme le montre la figure 4 pour Cd, Pb, et Zn, les stations les plus éloignées des activités industrielles et logistiques présentent une ZIP. Au sein de la ZIP ($< 10\ \text{km}$), les niveaux sont

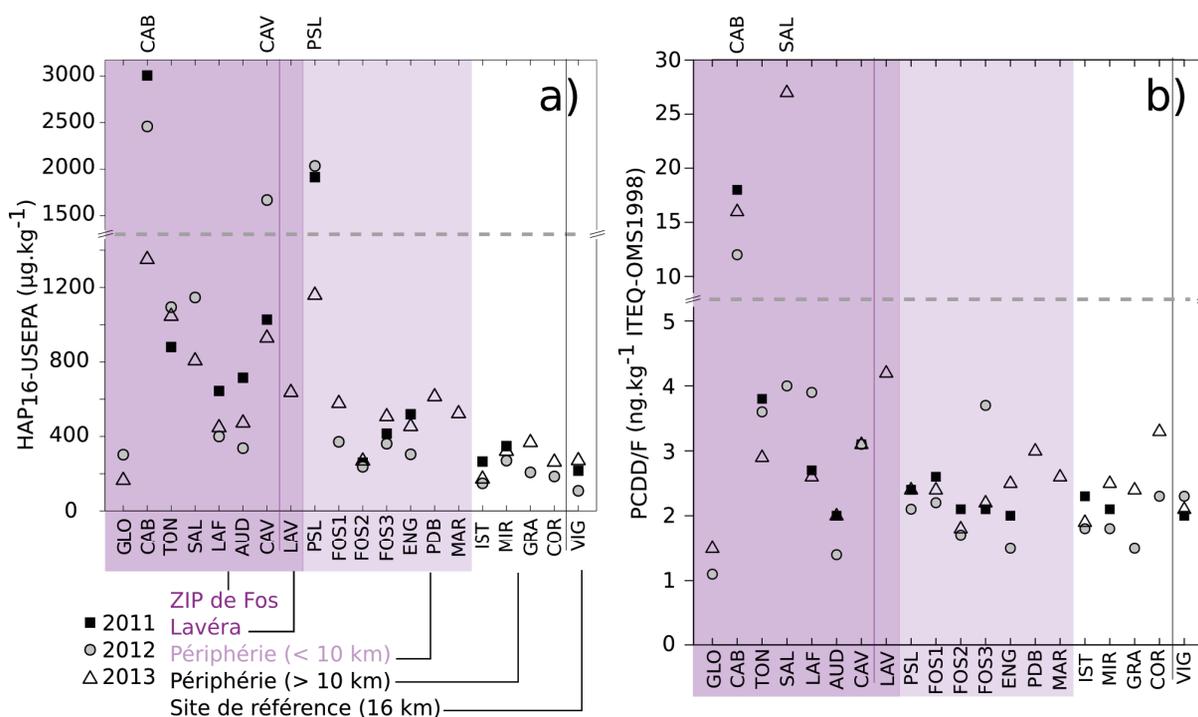


Figure 3. Concentrations mesurées dans les thalles de *X. parietina* a) en HAP et b) en PCDD/F pour les 3 années de suivi (2011 à 2013), dans la ZIP de Fos et à Lavéra (fond foncé), en périphérie < 10 km (fond clair) et à une distance > 10 km (blanc)

Concentrations of, a) PAH and b) PCDD/F, in *X. parietina* for the 3 years of monitoring (2011 to 2013), in the Fos and Lavéra industrial zones (dark background), in their outskirts (clear background) and > 10 km away (white background)

relativement proches. Les variations interannuelles ne présentent aucune tendance particulière sur la période étudiée, quel que soit le type de station considéré. La description de l'ensemble des valeurs obtenues sur les trois années de suivi est indiquée dans le tableau III, comparées aux valeurs obtenues dans une zone industrialo-portuaire comparable à celle de Fos et Lavéra (Dunkerque) et une zone urbaine (Lille) par Occelli *et al.* (2013). Globalement, les concentrations mesurées dans *X. parietina* dans la région de Fos-sur-Mer sont du même ordre de grandeur que celles obtenues dans la Communauté Urbaine de Dunkerque (CUD), et nettement supérieures à celles observées en zone urbaine dans la Communauté Urbaine de Lille (CUDL). Seuls Sb et Pb présentent des valeurs légèrement inférieures à Fos-sur-Mer comparées à celles de la CUDL (tableau III). Il est possible que ces métaux résultent d'une pollution historique à Lille et Dunkerque par le trafic routier, et encore actuellement par le secteur résidentiel (Occelli *et al.*, 2013), ces zones étant plus densément peuplées que la région de Fos-sur-Mer. Les valeurs moyennes mesurées sur le territoire étudié sont également largement supérieures aux valeurs de référence de Occelli *et al.* (2013) ou de Bargagli et Nimis (2002), excepté pour Co.

Ces résultats montrent une analogie entre les zones industrialo-portuaires, qui semblent soumises à des problématiques similaires. La bio-accumulation par les lichens y est beaucoup plus forte que dans les zones urbaines de Lille ou Maubeuge (26), et certaines stations montrent des valeurs extrêmes. Cela démontre la nécessité de réaliser une surveillance particulière et adaptée à ces zones de forte implantation industrielle et logistique où l'atteinte environnementale et sanitaire pourrait être importante mais demeure insuffisamment étudiée.

Les références faisant part de mesures de métaux dans les thalles de *X. parietina* sont plus nombreuses que pour les polluants organiques. Elles montrent pour la plupart des niveaux nettement inférieurs à ce qui est mesuré en ville à Fos-sur-Mer, même pour les zones industrielles méditerranéennes (Scerbo *et al.*, 1999, 2002 ; Bruniati et Frati, 2007 ; Demiray *et al.*, 2012). Les niveaux mesurés en Slovaquie aux abords de la cimenterie évoquée précédemment sont également nettement plus faibles (Paoli *et al.*, 2014). En revanche, Hissler *et al.* (2008) mesurent des teneurs semblables au Luxembourg dans une zone à la fois urbanisée et industrialisée par une activité sidérurgique importante et la présence d'incinérateurs.

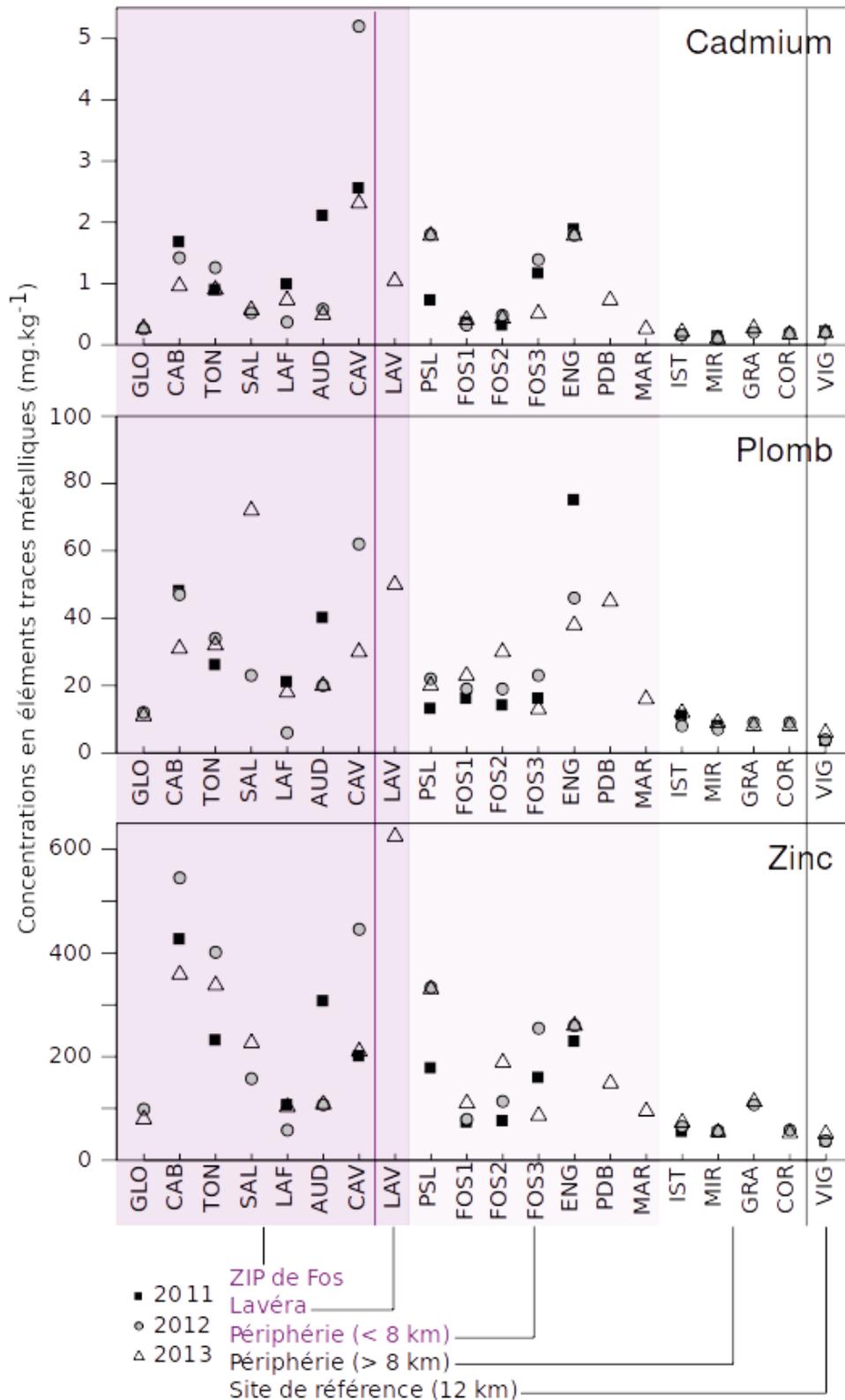


Figure 4. Teneurs en Cd, Pb et Zn dans *X. parietina* pour les 3 années de suivi (2011 à 2013), dans la ZIP de Fos et Lavéra (fond foncé), en périphérie < 10 km (fond clair) et à une distance > 10 km (fond blanc)

Cd, Pb and Zn concentrations in *X. parietina* for the 3 years of monitoring (2011 to 2013), in the Fos and Lavera industrial zones (dark background), in their outskirts (clear background) and > 10 km away (white background)

Tableau III. Mesures en métaux et métalloïdes réalisées lors des 3 années de suivi sur l'ensemble des stations de la zone de Fos-sur-Mer (en mg.kg⁻¹, N = 50), comparées aux valeurs moyennes mesurées dans les communautés urbaines de Dunkerque (CUD) et de Lille (CUDL) (Ocelli et al., 2013).

Metals and metalloids measurements realised during the 3 years of monitoring for all the stations of the Fos-sur-Mer region (mg.kg⁻¹, N = 50), compared to the mean values measured in the urban collectivities of Dunkirk (CUD) and Lille (CUDL).

| Elément | Min | Max | Moyenne | Moy. CUD | Moy. CUDL |
|---------|------|-------|---------|----------|-----------|
| Al | 934 | 12861 | 3807 | 1504 | 1093 |
| Ag | nd | 0,27 | 0,13 | - | - |
| As | 1,1 | 8,0 | 2,9 | 2,1 | 1,1 |
| Cd | 0,10 | 5,2 | 0,87 | 1,4 | 0,7 |
| Co | 0,51 | 3,7 | 1,60 | 1,5 | 0,7 |
| Cr | 4,0 | 61 | 18 | 38 | 4,6 |
| Cu | 9,3 | 49 | 21 | 19 | 19 |
| Fe | 1844 | 25399 | 7334 | - | - |
| Hg | nd | 1,8 | 0,19 | 0,2 | 0,1 |
| Mn | 47 | 1019 | 221 | 557 | 54 |
| Ni | 2,7 | 29 | 11 | 24 | 3,2 |
| Pb | 3,4 | 75 | 24 | 33 | 31 |
| Sb | nd | 2,74 | 0,81 | 1,8 | 1,7 |
| Sn | nd | 4,4 | 1,2 | - | - |
| V | 2,8 | 40 | 15 | 13 | 3,6 |
| Zn | 36 | 625 | 178 | 179 | 113 |

4. Discussion

4.1. Corrélations et origines des polluants accumulés par *X. parietina*

Les résultats de cette étude ont montré une importante influence des émissions anthropiques sur l'accumulation des polluants atmosphériques dans les lichens. L'influence de la ZIP de Fos et Lavéra sur son périmètre et sur les zones habitées alentour (Fos-sur-Mer, Port-Saint-Louis-du-Rhône, Martigues et Port-de-Bouc) est également mise en évidence pour l'ensemble des contaminants recherchés dans la bio-accumulation par les lichens. D'après les données IREP (IREP, 2015), la ZIP de Fos et Lavéra regroupe les principaux émetteurs du département (incinérateurs, activités pétrochimiques et sidérurgiques) de polluants métalliques (8 866 kg de Zn, 5 522 kg de Pb, 9 439 kg de Ni, 100 kg de Cd en 2012), de dioxines (3,5 g ITEQ en 2 012 émis par la ZIP) et de HAP (2 196 kg en 2012 émis par la ZIP).

Les coefficients de corrélation R^2 entre métaux/métalloïdes calculés sur l'ensemble des mesures (N = 50) sont globalement très élevés et dépassent même 0,7 pour Ni avec As, Pb, V, Co et Zn, ou encore pour Co avec As et V et pour Cd avec Mn (tableau IV). Les corrélations de Ni avec l'ensemble des métaux/

métalloïdes présentent d'ailleurs des coefficients $R^2 > 0,4$ ($p < 0,01$) excepté avec Hg et Sb. On peut également noter une bonne corrélation entre HAP et métaux/métalloïdes, notamment avec Cr ($R^2 = 0,78$). Ces corrélations élevées appuient encore davantage l'hypothèse d'une origine géographique commune de ces éléments pour l'ensemble du territoire étudié, centrée sur la ZIP de Fos et à Lavéra, même dans le cas de constituants majeurs des sols comme Fe, Al ou Mn. Si l'hypothèse d'une origine géographique commune est avancée ici, il faut aussi souligner l'importance d'autres facteurs dans l'accumulation des polluants tels que la biodisponibilité des contaminants (partition gaz/particules, spéciation) et la capacité de *X. parietina* à les assimiler.

D'autre part, certains contaminants ont peu de corrélation avec ceux cités précédemment, notamment Hg, Sb et les PCDD/F, et dans une moindre mesure Cu et Ag. Les PCDD/F sont d'ailleurs surtout corrélés à Cu et Sb, comme le montre également la figure 5. Ceci peut s'expliquer pour Cu par son action de catalyseur potentiel pour la formation des PCDD/F (Denys et Gombert, 2009). Le cas des PCDD/F autour de la ZIP de Fos et Lavéra est compliqué à interpréter, et les résultats de corrélation avec la distance ne sont pas significatifs contrairement aux HAP, ou au Cd, Pb et Zn, par exemple (tableau V).

Tableau IV. Corrélations entre concentrations en métaux/métalloïdes, HAP (HP) et PCDD/F (D/F) mesurées lors des 3 années de suivi dans les thalles de *X. parietina* (coefficients R^2 , $N = 50$). Les cellules grisées indiquent des coefficients $R^2 > 0,5$ ($p < 0,01$).

*Correlations between metal and metalloids, PAH (HP) and dioxins/furans (D/F) concentrations measured during the 3 years of monitoring in *X. parietina* thalli (R^2 coefficients, $N = 50$). The grey cells highlight $R^2 > 0.5$ ($p < 0.01$).*

| | Cr | Cu | As | Cd | Hg | Pb | Sb | V | Co | Mn | Zn | Al | Fe | Ag | Sn | HP | D/F |
|----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| Ni | 0,62 | 0,51 | 0,73 | 0,47 | 0,09 | 0,74 | 0,18 | 0,93 | 0,82 | 0,54 | 0,73 | 0,58 | 0,48 | 0,52 | 0,50 | 0,34 | 0,14 |
| Cr | | 0,41 | 0,37 | 0,34 | 0,28 | 0,48 | 0,19 | 0,67 | 0,66 | 0,41 | 0,69 | 0,60 | 0,51 | 0,31 | 0,13 | 0,78 | 0,31 |
| Cu | | | 0,34 | 0,23 | 0,11 | 0,53 | 0,57 | 0,45 | 0,37 | 0,21 | 0,48 | 0,20 | 0,08 | 0,18 | 0,35 | 0,29 | 0,26 |
| As | | | | 0,63 | 0,06 | 0,66 | 0,09 | 0,66 | 0,73 | 0,58 | 0,45 | 0,34 | 0,41 | 0,47 | 0,56 | 0,21 | 0,05 |
| Cd | | | | | 0,07 | 0,41 | 0,04 | 0,48 | 0,46 | 0,75 | 0,42 | 0,15 | 0,51 | 0,31 | 0,66 | 0,28 | 0,01 |
| Hg | | | | | | 0,04 | 0,02 | 0,09 | 0,22 | 0,03 | 0,19 | 0,13 | 0,03 | 0,03 | 0,00 | 0,46 | 0,09 |
| Pb | | | | | | | 0,31 | 0,68 | 0,60 | 0,42 | 0,51 | 0,47 | 0,41 | 0,17 | 0,46 | 0,21 | 0,26 |
| Sb | | | | | | | | 0,17 | 0,08 | 0,06 | 0,14 | 0,07 | 0,04 | 0,01 | 0,12 | 0,10 | 0,46 |
| V | | | | | | | | | 0,74 | 0,61 | 0,69 | 0,59 | 0,57 | 0,55 | 0,46 | 0,42 | 0,18 |
| Co | | | | | | | | | | 0,53 | 0,70 | 0,60 | 0,43 | 0,45 | 0,30 | 0,45 | 0,13 |
| Mn | | | | | | | | | | | 0,49 | 0,16 | 0,66 | 0,41 | 0,53 | 0,24 | 0,03 |
| Zn | | | | | | | | | | | | 0,35 | 0,32 | 0,47 | 0,27 | 0,50 | 0,16 |
| Al | | | | | | | | | | | | | 0,42 | 0,16 | 0,10 | 0,42 | 0,22 |
| Fe | | | | | | | | | | | | | | 0,22 | 0,32 | 0,29 | 0,07 |
| Ag | | | | | | | | | | | | | | | 0,23 | 0,29 | 0,06 |
| Sn | | | | | | | | | | | | | | | | 0,05 | 0,00 |
| HP | | | | | | | | | | | | | | | | | 0,26 |

Tableau V. Coefficients de corrélation de Pearson R et valeurs-p correspondantes entre la bioaccumulation des principaux contaminants émis par la ZIP (moyennes sur 3 ans, $N = 20$), les valeurs de l'IPA et la distance des stations à la ZIP de Fos ou Lavéra. Les cellules grisées indiquent des corrélations significatives ($p < 0,05$).

Pearson R correlation coefficients and corresponding p-values obtained for the bioaccumulation of the main contaminants emitted by the local industries (3-years means, $N = 20$), the IAP values and the distance to the Fos or Lavera industrial centers. The grey cells highlight significant correlations ($p < 0.05$).

| | | HAP | PCDD/F | Pb | Cd | Zn | Distance |
|----------|---|---------|---------|---------|---------|---------|----------|
| IPA | R | - 0,736 | -0,49 | - 0,89 | - 0,685 | - 0,842 | 0,876 |
| | p | 0,024 | 0,181 | 0,001 | 0,042 | 0,004 | 0,002 |
| Distance | R | - 0,458 | - 0,167 | - 0,565 | - 0,49 | - 0,46 | - |
| | p | 0,042 | 0,481 | 0,009 | 0,029 | 0,042 | - |

De même, certaines stations présentent des niveaux *a priori* peu cohérents avec leur proximité à la ZIP de Fos et Lavéra, notamment LAF, GLO et AUD situées autour de la ZIP (figures 4 et 5). La station GLO, située entre la ZIP et la ville de Port-Saint-Louis-du-Rhône, se trouve dans des marais salés inondés en hiver lors des prélèvements où les vents dominants (nord-ouest et sud-est) orientent relativement peu les émissions industrielles vers le

site. La station AUD est située en bordure du complexe sidérurgique, dans une zone d'étangs d'eau douce relativement boisée, en comparaison aux autres stations de la ZIP. Ces spécificités micro-locales pourraient avoir une influence sur les teneurs mesurées dans ces sites. Cela démontre à nouveau que parmi les stations proches des sites industriels, une grande variabilité peut être observée pour de multiples raisons locales, comme la topographie,

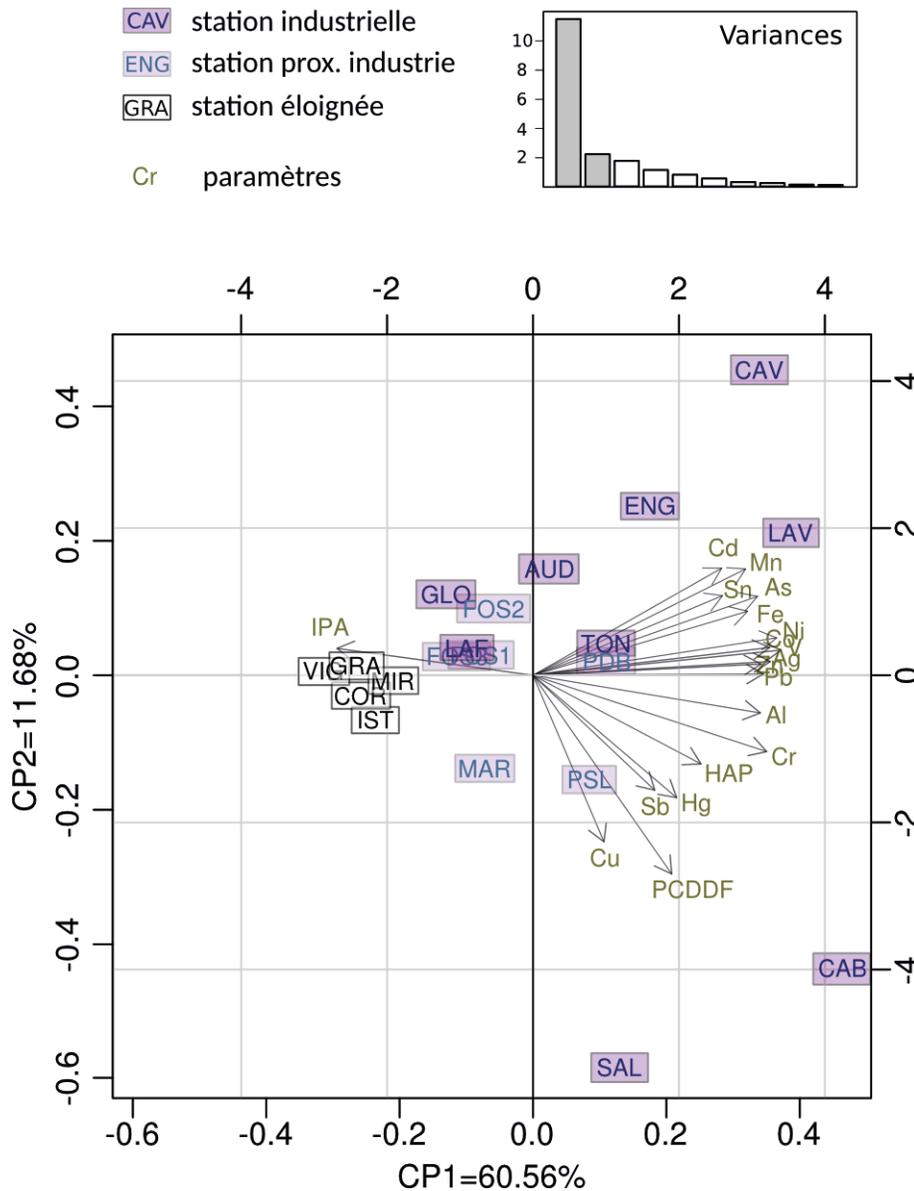


Figure 5. Analyse en composantes principales (deux premières composantes, CP1 et CP2 comptant pour 72,2 % de la variance) basée sur la biodiversité (IPA) et la bio-accumulation de divers polluants par *X. parietina* sur les différentes stations échantillonnées (moyennes sur 3 ans, N = 20)

Principal component analysis (first two components, CP1 et CP2 accounting for 72,2% of the variance) based on biodiversity (IAP) and bioaccumulation of various contaminants by X. parietina for all the monitored stations (3-years means, N = 20)

la végétation, l'environnement et la météo (notamment l'orientation des vents).

Afin d'affiner ces travaux, le détail des profils en PCDD/F et HAP pourra être étudié et mis en relation avec les mesures physico-chimiques effectuées sur le territoire (atmosphère et sols), afin d'apporter de nouveaux éléments vis-à-vis de l'origine et de l'assimilation des polluants par *X. parietina*. L'identification plus précise des sources selon le secteur d'activité demande une connais-

sance plus précise des émissions des sites industriels et de la micro-météorologie sur les stations étudiées.

4.2. Diversité lichénique et bio-accumulation pour évaluer l'impact environnemental des émissions anthropiques de la ZIP de Fos et Lavéra

Il apparaît très nettement que la diversité lichénique et les indices écologiques tels que l'IPA sont inver-

sement corrélés à la bioaccumulation des polluants atmosphériques par *X. parietina* (figure 5, tableau V). Il est ainsi mis en évidence une grande diversité lichénique ainsi qu'un IPA indiquant une bonne qualité pour les stations les plus excentrées de la ZIP (MIR, GRA, VIG).

La flore lichénique, à travers sa diversité, est fortement altérée par les émissions industrielles et routières de la ZIP de Fos et Lavéra. En effet, l'éloignement géographique de la ZIP de Fos et de Lavéra, à l'origine d'émissions industrielles et routières, présente une corrélation linéaire positive avec l'IPA ($R = 0,876$ et $p < 0,005$). Des résultats similaires ont été observés sur des travaux menés sur des sites industriels ou des zones fortement urbanisées présentant de fortes pressions anthropiques (Gombert *et al.*, 2004 ; Blasco *et al.*, 2008 ; Branquinho *et al.*, 2008).

Les PCDD/F sont majoritairement émis par le complexe sidérurgique ArcelorMittal dans la ZIP (IREP, 2015). Elles semblent impacter les stations des Salins et du Caban (SAL et CAB) situées au nord du complexe, avec des concentrations comprises entre 4 et 27 ng.kg⁻¹ ITEQ dans les thalles de *X. parietina* et une faible diversité lichénique, avec seulement 12 espèces observées au Caban (CAB).

Les corrélations négatives entre la bioaccumulation des polluants par *X. parietina*, la diversité lichénique et l'IPA des stations sont significatives ($R < -0,68$ et $p < 0,05$), comme le montre le tableau V pour les HAP, le Cd, Pb et Zn. Comme pour Pb et Zn, elles sont élevées pour les éléments Al, As, Co, Cr, Cu, Mn, Ni, V ($R < -0,8$) et légèrement inférieures pour Ag, Fe, Hg et Sn (R compris entre -0,6 et -0,8). Cela semble indiquer que l'exposition à des aérosols conduisant à une accumulation de ces éléments dans *X. parietina* est une des principales sources de perturbations environnementales sur la ZIP. De même, une corrélation négative entre la bioaccumulation des HAP, Pb, Zn et Cd et la distance à la ZIP est observée, au contraire des indices de diversité lichénique qui sont significativement et positivement corrélés à la distance. Ceci semble confirmer que la principale source d'émission de ces polluants a bien pour origine les activités industrielles et connexes (trafic maritime et routier) de la ZIP de Fos et Lavéra. L'ensemble de ces résultats met ainsi en évidence la pertinence de l'utilisation des lichens dans la biosurveillance des pollutions atmosphériques et l'apport du couplage entre bio-indication et mesure de bio-accumulation, notamment sur des zones à fortes pressions anthropiques responsables de perturbations environnementales (Branquinho *et al.*, 2008 ; Stamenkovic *et al.*, 2010 ; Ocelli *et al.*, 2013 ; Paoli *et al.*, 2014).

5. Conclusions

L'étude présentée ici constitue un travail important de biosurveillance dont la singularité réside notamment dans le suivi simultané d'un grand nombre de contaminants chimiques (métaux/métalloïdes, HAP, PCDD/F) chez une espèce de lichen épiphyte (*X. parietina*) sur trois années consécutives et la mesure de bio-indication par les lichens sur un territoire intercommunal comprenant l'une des plus grandes ZIP d'Europe et de Méditerranée. Cela a permis de mettre en évidence l'influence de celle-ci sur l'ensemble des paramètres environnementaux étudiés, mais aussi de pointer certains axes de travail nécessaires pour affiner les interprétations. Le suivi annuel de la bio-accumulation n'a montré que peu de variations, indiquant que la fréquence de celui-ci peut être abaissée pour au moins une partie des stations.

La mise en parallèle avec des mesures physico-chimiques dans l'atmosphère et les sols sont une première étape indispensable afin de mieux comprendre l'action des contaminants sur l'imprégnation et la diversité des lichens. Il pourra en résulter une meilleure interprétation de l'impact des sources d'émission, ou encore des mécanismes conduisant à l'accumulation des polluants et la dégradation de la diversité lichénique par les émissions polluantes. L'évaluation de l'impact sanitaire et environnemental de la ZIP constitue le principal objectif de ce type d'étude qui pourra ainsi être affiné au fur et à mesure de l'acquisition de nouvelles données, de leurs croisements et de leurs interprétations.

Si la relation entre les émissions de la ZIP et l'imprégnation des lichens est mise en évidence et nécessite d'être précisée, l'importance de ce type de travail dans les grandes zones industrielles n'est plus à démontrer. Il a encore été pointé la complexité de l'exposition dans ces environnements de par le fait de la présence simultanée de nombreux contaminants issus de sources nombreuses et variées. À l'image des nombreux travaux réalisés dans les grands centres urbains, les milieux fortement industrialisés, tels que les ZIP de Fos et Lavéra et de Dunkerque en France, requièrent aujourd'hui une attention accrue et intégrée.

L'Institut Écocitoyen adresse ses sincères remerciements aux services des villes concernées par l'étude (Fos-sur-Mer, Port-Saint-Louis-du-Rhône, Istres, Miramas, Grans, Cornillon-Confoux, Port-de-Bouc, Martigues) pour leur soutien et pour avoir permis le bon déroulement de l'étude. Les auteurs remercient également la Réserve Naturelle Nationale des Marais du Vigueirat et ses guides pour avoir fourni un accès et un accompagnement sur le territoire de la réserve.

Références bibliographiques

Agnan Y. (2013). Bio-accumulation et bio-indication par les lichens de la pollution atmosphérique actuelle et passée en métaux et en azote en France : sources, mécanismes et facteurs d'influence – Thèse de doctorat, Toulouse (université Paul Sabatier), 306 p.

Augusto S, Pinho P, Branquinho C *et al.* (2004). Atmospheric dioxin and furan deposition in relation to land-use and other pollutants: A survey with lichens, *Journal of Atmospheric Chemistry*, n° 49 p. 53-65.

Augusto S, Maguas C, Branquinho C. (2009). Understanding the performance of different lichen species as biomonitors of atmospheric dioxins and furans: potential for intercalibration, *Ecotoxicology*, n° 18, p. 1036-1042.

Augusto S, Maguas C, Matos J *et al.* (2010). Lichens as an integrating tool for monitoring PAH atmospheric deposition: A comparison with soil, air and pine needles, *Environmental Pollution*, n° 158(2), p. 483-489.

Augusto S, Maguas C, Branquinho C. (2013). Guidelines for biomonitoring persistent organic pollutants (POPs), using lichens and aquatic mosses – A review, *Environmental Pollution*, n° 180, p. 330-338.

Bargagli R, Nimis PL. (2002). Guidelines for the use of epiphytic lichens as biomonitors of atmospheric deposition of trace elements. Dans *Monitoring with Lichens – Monitoring Lichens* (Nimis, Scheidegger and Wolseley Eds.), Kluwer/NATO Science Series, Earth and environmental sciences, Dordrecht, p. 295-299.

Blasco M, Domeño C, Nerin C. (2008). Lichens biomonitoring as feasible methodology to assess air pollution in natural ecosystems: Combined study of quantitative PAHs analyses and lichen biodiversity in the Pyrenees Mountains, *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, n° 391, p. 759-771.

Branquinho C, Gaio-Oliveira G, Augusto S *et al.* (2008). Biomonitoring spatial and temporal impact of atmospheric dust from a cement industry, *Environmental Pollution*, n° 151(2), p. 292-299.

Brunialti G, Frati L. (2007). Biomonitoring of nine elements by the lichen *Xanthoria parietina* in Adriatic Italy: A retrospective study over a 7-year time span, *Science of the Total Environment*, n° 387, p. 289-300.

Clauzade G, Roux C. (1985). *Likenoj de Okcidenta Eŭropo. Ilustrita determinlibro. Société Botanique du Centre Ouest.*

Conti ME, Cecchetti G. (2001). Biological monitoring: lichens as bioindicators of air pollution assessment - a review, *Environmental Pollution*, n° 114(3), p. 471-492.

Demiray AD, Yolcubal I, Akyol NH, Cobanoglu G. (2012). Biomonitoring of airborne metals using the Lichen *Xanthoria parietina* in Kocaeli Province, Turkey, *Ecological Indicators*, n° 18, p. 632-643.

Denys S, Gombert D. (2009). Saint Cyprien (42) : évaluation d'une contamination par les PCBs et les PCDD/Fs et recherche des responsabilités associées - INERIS, Rapport Technique DRC-09-104782-10464A.

Dobson FS. (2011). *Lichens, an illustrated guide to the British and Irish species.* The Richmond Publishing Co. Ltd, 6th ed., Slough (England), 496 p.

Domeño C, Blasco M, Sánchez C, Nerin C. (2006). A fast extraction technique for extracting polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from lichens samples used as biomonitors of air pollution: Dynamic sonication versus other methods, *Analytica Chimica Acta*, n° 569, p. 103-112.

Giraudeau P. (2009). Mesure des teneurs environnementales en polychlorodibenzodioxines et en polychlorodibenzofuranes en utilisant les lichens comme matériel de dosage - Brevet N°0103485 (France, INPI).

Gombert S, Asta J, Seaward MRD. (2004). Assessment of lichen diversity by index of atmospheric purity (IAP), index of human impact (IHI) and other environmental factors in an urban area (Grenoble, southeast France), *Science of the Total Environment*, n° 324(1-3), p. 183-199.

Guidotti M, Stella D, Owczarek M *et al.* (2003). Lichens as polycyclic aromatic hydrocarbon bioaccumulators used in atmospheric pollution studies, *Journal of Chromatography A*, n° 985, p. 185-190.

Hissler C, Stille P, Krein A *et al.* (2008). Identifying the origins of local atmospheric deposition in the steel industry basin of Luxembourg using the chemical and isotopic composition of the lichen *Xanthoria parietina*, *Science of the Total Environment*, n° 405, p. 338-344.

IREP, (2015). <http://www.pollutionsindustrielles.ecologie.gouv.fr/IREP/>

Kricke R, Loppi S. (2002). Bioindication: the IAP approach – Dans *Monitoring with Lichens – Monitoring Lichens* (Nimis, Scheidegger and Wolseley Eds.), Kluwer/NATO Science Series, Earth and environmental sciences, Dordrecht, p. 21-37.

LeBlanc SCF, Sloover JD. (1970). Relation between industrialization and the distribution and growth of epi-phytic lichens and mosses in Montreal, *Canadian Journal of Botany*, n° 48, p. 1485-1496.

Llop E, Pinho P, Matos P *et al.* (2012). The use of lichen functional groups as indicators of air quality in a Mediterranean urban environment, *Ecological Indicators*, n° 13(1), p. 215-221.

Nimis P, Andreussi S, Pittao E. (2001). The performance of two lichen species as bioaccumulators of trace metals, *Science of the Total Environment*, n° 275, p. 43-51.

Occelli F, Cuny MA, Devred I *et al.* (2013). Étude de l'imprégnation de l'environnement de trois bassins de vie de la région Nord-Pas-de-Calais par les éléments Traces Métalliques, *Pollution Atmosphérique*, n° 220. <http://dx.doi.org/10.4267/pollution-atmospherique.2497>

Paoli L, Guttová A, Grassi A *et al.* (2014). Biological effects of airborne pollutants released during cement production assessed with lichens (SW Slovakia), *Ecological Indicators*, n° 40, p. 127-135.

Poličnik H, Simončič P, Batič F. (2008). Monitoring air quality with lichens: a comparison between mapping in forest sites and in open areas, *Environmental Pollution*, n° 151, p. 395-400.

R Development Core Team. (2015). R: A language and environment for statistical computing – R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria.

Scerbo R, Possenti L, Lampugnani L *et al.* (1999). Lichen (*Xanthoria parietina*) biomonitoring of trace element contamination and air quality assessment in Livorno Province (Tuscany, Italy), *Science of the Total Environment*, n° 241, p. 91-106.

Scerbo R, Ristori T, Possenti L *et al.* (2002). Lichen (*Xanthoria parietina*) biomonitoring of trace element contamination and air quality assessment in Pisa Province (Tuscany, Italy), *Science of the Total Environment*, n° 286, p. 27-40.

Schrlau JE, Geiser L, Hageman KJ *et al.* (2011). Comparison of lichen, conifer needles, passive air sampling devices, and snowpack as passive sampling media to measure semi-volatile organic compounds in remote atmospheres, *Environmental Science and Technology*, n° 45(24), p. 10354-10361.

Shukla V, Upreti DK, Bajpai, R. (2013). *Lichens to biomonitor the environment* - Springer Ed., London, 185 p.

Smith CW, Aptroot A, Coppins BJ *et al.* (2009). *The lichens of Great Britain and Ireland*, 2nd ed. British Lichen Society, London.

Stamenkovic S, Cvijan M, Arandjelovic M. (2010). Lichens as bioindicators of air quality in Dimitrovgrad (south-eastern Serbia), *Archives of Biological Sciences*, n° 62(3), p. 643-648.

Tiévant P. (2001). *Guide des lichens : 350 espèces de lichens d'Europe*, Lausanne, Delachaux et Niestlé, 304 p.

Van Haluwyn C, Lerond M. (1986). *Les lichens et la qualité de l'air, évolution méthodologique et limites*, Paris, ministère de l'Environnement.

Van Haluwyn C, Lerond M. (1993). *Guide des Lichens*, Paris, Lechevalier, 344 p.

Van Haluwyn C, Asta J, Gavériaux JP. (2009). *Guide des lichens de France : lichens des arbres*, Paris, Belin, 231 p.

Van Haluwyn C, Asta J, Gavériaux JP. (2013). *Guide des lichens de France : lichens des arbres*, Paris, Belin, 231 p.