

Rapport d'Étude

Bioimprégnation & biodiversité lichénique comme indicateurs de la pollution atmosphérique autour de la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer (période 2011-2013)

PROGRAMME LICHENS 2011 – 2013

Rapport constitué de l'article à paraître dans la revue « Pollution Atmosphérique » suite à la présentation des résultats au workshop APPA Biosurveillance-2014 (Lille, 13-14 octobre 2014)

2014

Julien Dron, Annabelle Austruy, Yannick Agnan, Philippe Chamaret

Institut Écocitoyen
pour la Connaissance des Pollutions
Centre de Vie La Fossette, RD 268
13270 Fos-sur-Mer
04 90 55 49 97
julien.dron@institut-ecocitoyen.fr
www.institut-ecocitoyen.fr

Institut écocitoyen pour la connaissance des pollutions



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

J. DRON[1], A. AUSTRUY[1], Y. AGNAN[1], P. GIRAUDEAU[2], P. CHAMARET[1]

[1] Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions, Centre de Vie La Fossette RD 268, 13270 Fos-sur-Mer. julien.dron@institut-ecocitoyen.fr

[2] Société AairLichens, 44470 Carquefou. aair.lichens@wanadoo.fr

Mots-clés : bioindication, bioaccumulation, lichen, HAP, dioxines/furanes, métaux, zone industrialo-portuaire

1. Introduction

L'intercommunalité Ouest-Provence (98 000 habitants), qui s'étend à l'ouest de l'étang de Berre (Bouches-du-Rhône, France), est 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. La collectivité regroupe six communes sur une superficie de 355 km² et compte près de 50 sites industriels dont 12 sont classés SEVESO (et 32 sont localisés sur la commune de Fos-sur-Mer). L'ensemble de ces sites compose la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer (ZIP de Fos) qui couvre plus de 10 000 ha et accueille de nombreuses industries lourdes, dans les domaines du raffinage, de la pétrochimie et de la sidérurgie ainsi que deux incinérateurs de déchets, auxquels s'ajoute l'activité portuaire du plus important port de commerce français. De fait, il s'agit d'une zone géographique urbanisée, exposée aux émissions industrielles, aux trafics routier et maritime. Cependant, peu de données concernant l'état environnemental de la zone sont aujourd'hui disponibles. Car 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'habitations alentour, rendant particulièrement difficile l'établissement de liens entre ces résultats de suivis environnementaux avec un éventuel impact sanitaire pour les populations.

L'Institut Écocitoyen pour la Connaissance des Pollutions (IECP), en partenariat avec la société Aair Lichens, présente ici les résultats d'une biosurveillance lichénique complète sur un territoire intégrant la zone industrialo-portuaire ainsi que les villes alentours. Les lichens, symbioses entre un champignon et une algue ou cyanobactérie, ont pour principales sources d'éléments nutritifs les apports atmosphériques et peuvent ainsi être très sensibles aux polluants atmosphériques métalliques et organiques [1-3]. Ils sont considérés comme des bioindicateurs pertinents de la qualité de l'air et ont ainsi été largement utilisés pour mesurer l'exposition des écosystèmes terrestres aux métaux traces ou à divers composés organiques tels que les PCBs (polychlorobiphényles), les HAPs (hydrocarbures aromatiques polycycliques) ou les dioxines en utilisant leur qualité de bioaccumulateurs de polluants atmosphériques [4-8]. De même, la diversité lichénique est utilisée comme un indicateur depuis le XIXe siècle pour surveiller les effets de la pollution de l'air dans les zones urbaines ou industrielles [8-10]. Celle-ci

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 [7].

Les travaux de biosurveillance lichénique présentés ici s'articulent autour de relevés de flore lichénique épiphyte réalisés entre 2011 et 2013, et de prélèvements de thalles de *Xanthoria parietina* effectués une fois par an depuis 2011 pour mesurer la bioaccumulation des polluants. Les analyses conduites sur ces prélèvements concernent à la fois 17 métaux et métalloïdes, les 16 HAP de la liste USEPA et les dioxines et furanes (PCDD/F) de la liste OMS. La complémentarité des deux approches est ainsi utilisée pour améliorer la connaissance de l'état environnemental du territoire intercommunal de Ouest-Provence.

2. Matériels et méthodes

2.1. Choix des stations d'observation et de prélèvements

La zone d'étude a d'abord été centrée sur la zone industrialo-portuaire (ZIP de Fos) et les villes adjacentes (Port-Saint-Louis-du-Rhône et Fos-sur-Mer), qui

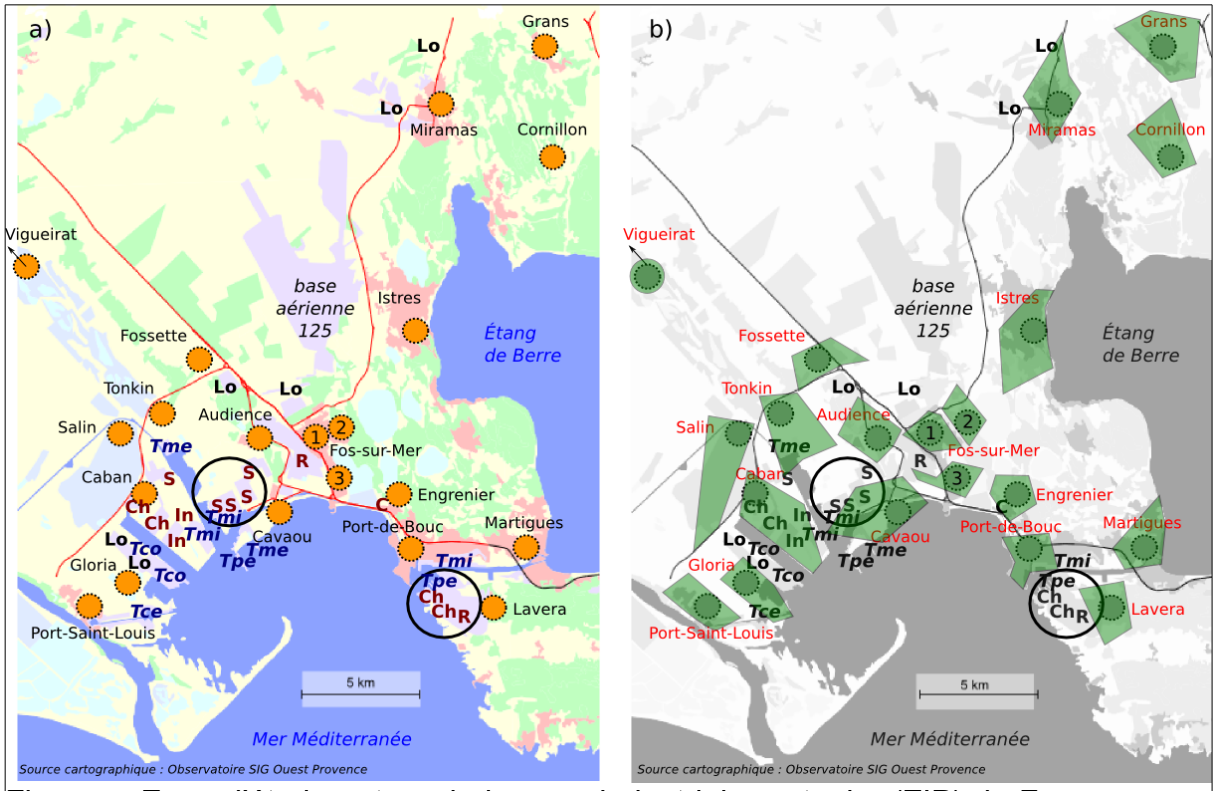

Figure 1. Zone d'étude autour de la zone industrialo-portuaire (ZIP) de Fos avec ses principales activités industrielles (les cercles représentent le complexe sidérurgique ArcelorMittal Méditerranée défini ici comme le centre de la ZIP de Fos et le complexe pétrochimique de Lavéra). Sont indiqués a) les emplacement des sites de prélèvements de *X. parietina* et b) les délimitations des zones des relevés de flore lichénique correspondantes.

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

concentrent le plus de points d'observations et de prélèvements 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 villes ou des quartiers plus éloignés. Une station située au sein de la réserve naturelle nationale des Marais du Vigueirat a été choisie afin de constituer un site dit de référence local, éloigné de tout centre urbain et axe routier et situé à 16 km du centre de la ZIP.

Les années suivantes ont vu s'étendre la zone d'étude vers des localités de l'intercommunalité Ouest-Provence plus éloignées (Grans et Cornillon en 2012) et autour du complexe pétrochimique de Lavéra en 2013 (Lavéra, Port-de-Bouc, Martigues). Ces extensions ont pour objectifs respectifs d'analyser l'influence éventuelle des zones industrielles locales au-delà de 10 km sur l'imprégnation et la diversité lichénique, ainsi que de tenir compte et mesurer l'impact du deuxième grand centre industriel à proximité de Fos-sur-Mer. Les stations ont été classées en trois catégories en fonction de leur distance à la zone industrielle de Fos (ou de Lavéra) : (i) les stations situées dans la ZIP de Fos ou sur le complexe pétrochimique de Lavéra, (ii) les stations situées en périphérie et (iii) les stations situées à plus de 10 km du centre de la ZIP ou de Lavéra (Tableau I).

Nom station	Code	Distance (km)	Catégorie	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	Périphérie	Port-Saint-Louis
Fos-Carabins	FOS1	5,0	Périphérie	Fos-sur-Mer
Fos-Mazet	FOS2	6,5	Périphérie	Fos-sur-Mer
Fos-Oliviers	FOS3	5,0	Périphérie	Fos-sur-Mer
Engrenier	ENG	5,5	Périphérie	Fos-sur-Mer
Port-de-Bouc	PDB	3,5	Périphérie	Port-de-Bouc
Martigues	MAR	4,5	Périphérie	Martigues
Istres	IST	11	> 10 km	Istres
Miramas	MIR	20	> 10 km	Miramas
Grans	GRA	25	> 10 km	Grans
Cornillon	COR	21	> 10 km	Cornillon
Vigueirat	VIG	16	Réf. locale	Arles

Tableau I : Liste et catégories des stations en fonction de leur distance aux principaux centres industriels autourd e Fos-sur-Mer (ZIP de Fos centrée sur le complexe sidérurgique et Lavéra).

2.2. Relevés de biodiversité lichénique

Sur chacune des 20 stations, des relevés de lichens corticoles ont été réalisés entre 2011 et 2013, avec un minimum de 4 relevés par station et 5 à 10 arbres échantillonnés par relevé (Figure 1). Ces relevés ont été réalisés à partir d'une liste préétablie de 41 espèces de lichens (selon la méthode IGQA®, AairLichens) regroupant des espèces présentant des thalles crustacés, foliacés et fruticuleux (Tableau II). Chaque relevé a été géopositionné et des données sur la taille de la station et son exposition ont été enregistrées. Les relevés lichéniques ont été effectués sur les 4 faces des phorophytes (arbres supports) sélectionnés entre 50 et 150 cm de hauteur.

CRUSTACES		FOLIACES		FRUTICULEUX	
Espèces	To	Espèces	To	Espèces	To
Amandinea punctata	3	*Chrysothrix candelaris*	2	*Anaptychia ciliaris*	1
Buellia alboatra	3	*Flavoparmelia caperata*	1	*Evernia prunastri*	2
Caloplaca cerina	1	*Hypogymnia physodes*	3	*Pseudevernia furfuracea*	1
Caloplaca luteoalba	2	*Hypotrachyna revoluta*	2	*Ramalina farinacea*	2
Diploicia canescens	3	*Melanelia glabratula*	2	*Ramalina fastigiata*	1
Lecanora chlarotera	2	*Melanelixia subaurifera*	2	*Ramalina fraxinea*	1
Lecanora conizaeoides	3	*Parmelia saxatilis*	3	*Usnea sp.*	1
Lecanora expallens	3	*Parmelia sulcata*	3		
Lepraria incana	3	*Parmelina tiliacea*	1		
Pertusaria albescens	2	*Parmotrema perlatum*	1		
Pertusaria amara	2	*Phaeophyscia orbicularis*	3		
Pertusaria pertusa	2	*Physcia adscendens*	3		
Phlyctis argena	2	*Physcia aipolia*	2		
		Physcia tenella	3		
		Physconia distorta	2		
		Physconia grisea	3		
		Pleurosticta acetabulum	2		
		Punctelia subrudecta ou borreri	2		
		Xanthoria candelaria	2		
		Xanthoria parietina	3		
		Xanthoria polycarpa	3		

Tableau II : Liste des espèces lichéniques de référence utilisées pour caractériser la flore lichénique de chaque station (méthode IGQA®, AairLichens) et indice de toxitolérance variant de 1 pour les espèces les plus sensibles à 3 pour les espèces tolérantes à la pollution [8, 11].

To : Toxicotolérance 1 = faible ; 2 = moyenne ; 3 = forte.

Pour chaque station étudiée, la richesse en espèces a été enregistrée et l'indice de diversité de Shannon-Wiener (H') a été calculé selon la formule (1) :

$$H' = -\sum_{i=1}^{n} p_i \ln\left(p_i\right) \quad (1)$$

où :
i = espèce lichénique
p_i = proportion relative (couverture) de l'espèce i.
n = nombre total d'espèces observées

L'indice de Shannon est sensible aux variations d'importance des espèces les plus rares, permettant de mesurer la biodiversité lichénique de chaque station [12].

D'autre part, l'indice de pureté atmosphérique (IPA), élaboré au Québec par Leblanc et Sloover [13], a également été déterminé à partir des relevés de flore. C'est un indice de qualité de l'air déterminé à partir de la flore lichénique épiphyte. Il se calcule à partir de la formule suivante (2) :

$$IPA = \frac{1}{10} \times \sum_{i=1}^{n} \left(Q_i \times f_i\right) \quad (2)$$

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)

2.3. Prélèvements et analyses de *X. parietina*

Des thalles entiers de lichen *Xanthoria parietina* ont été prélevés sur tronc sur des parcelles de 200 m² environ dans le but d'y mesurer les métaux et ETM, les HAP (méthode Li-HAP® AairLichens) et les PCDD/F [5]. Les échantillons ont été choisis sur différentes essences d'arbres (principalement frênes, chênes verts, tamaris), jusqu'à constituer un échantillon composite de 10 à 15 g environ qui a été immédiatement conservé à 4 °C. Après nettoyage des thalles à la loupe binoculaire pour les débarrasser des fragments d'écorces, d'espèces non souhaitées ou/et autres poussières (…), ils ont été séchés à 40 °C pendant 24 h et congelés à −20 °C. Les analyses ont été confiées au Laboratoire CARSO de Lyon, certifié COFRAC pour l'ensemble des de ces mesures sur les matrices lichens.

Les 16 HAP de la liste USEPA ont été analysés par GC-MS-MS avec des étalons deutérés, et les PCDD/F (liste OMS pour le calcul de l'ITEQ) par HRGC-MS (Autospec ULTIMA, Waters) selon les normes NF EN 1948-2 et -3. Les échantillons ont, d'autre part, été minéralisés par HF en micro-onde et analysés par ICP-AES pour Al, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, V et Zn et par ICP-MS pour As, Hg, Cd, Ag, Co, Sb, Sn et Tl. 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 (bioindication et bioaccumulation) et notamment les analyses statistiques ont été réalisées au moyen du logiciel R [14].

3. Résultats

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

3.1.1. Diversité lichénique et indice de Shannon

La biodiversité lichénique varie entre 6 et 21 espèces (Figure 2), avec en moyenne 12 espèces rencontrées par site parmi une liste préétablie de 41 espèces (voir Tableau II). La répartition géographique de ces résultats témoigne d'un impact significatif de la ZIP de Fos-sur-Mer sur la biodiversité lichénique ($p < 0,05$ entre les stations distantes de plus de 10 km, et celles de la ZIP et à moins de 10 km), même si localement des écarts importants sont observés, notamment en périphérie de la zone industrielle. En effet, les stations les plus excentrées de la ZIP (> 10 km) présentent la plus grande diversité, avec une biodiversité maximale de 21 espèces relevées sur la station d'Istres (IST) et une moyenne de 16 espèces pour ces stations. Inversement, les stations situées au sein 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 10 espèces par station sur l'ensemble de la ZIP et seulement 5 espèces sur les 41 étudiées à Lavéra. De même, la diversité lichénique enregistrée sur les stations résidentielles situées à moins de 10 km de la ZIP est comparable à celle mesurée au sein de la ZIP avec 9 espèces en moyenne par station.

L'espèce la plus fréquemment rencontrée est *Xanthoria parietina*, espèce nitrophile, héliophile et toxitolérante [3, 15]. Les genres *Physcia* et *Physconia* sont également présents sur l'ensemble des stations, mais avec une abondance plus

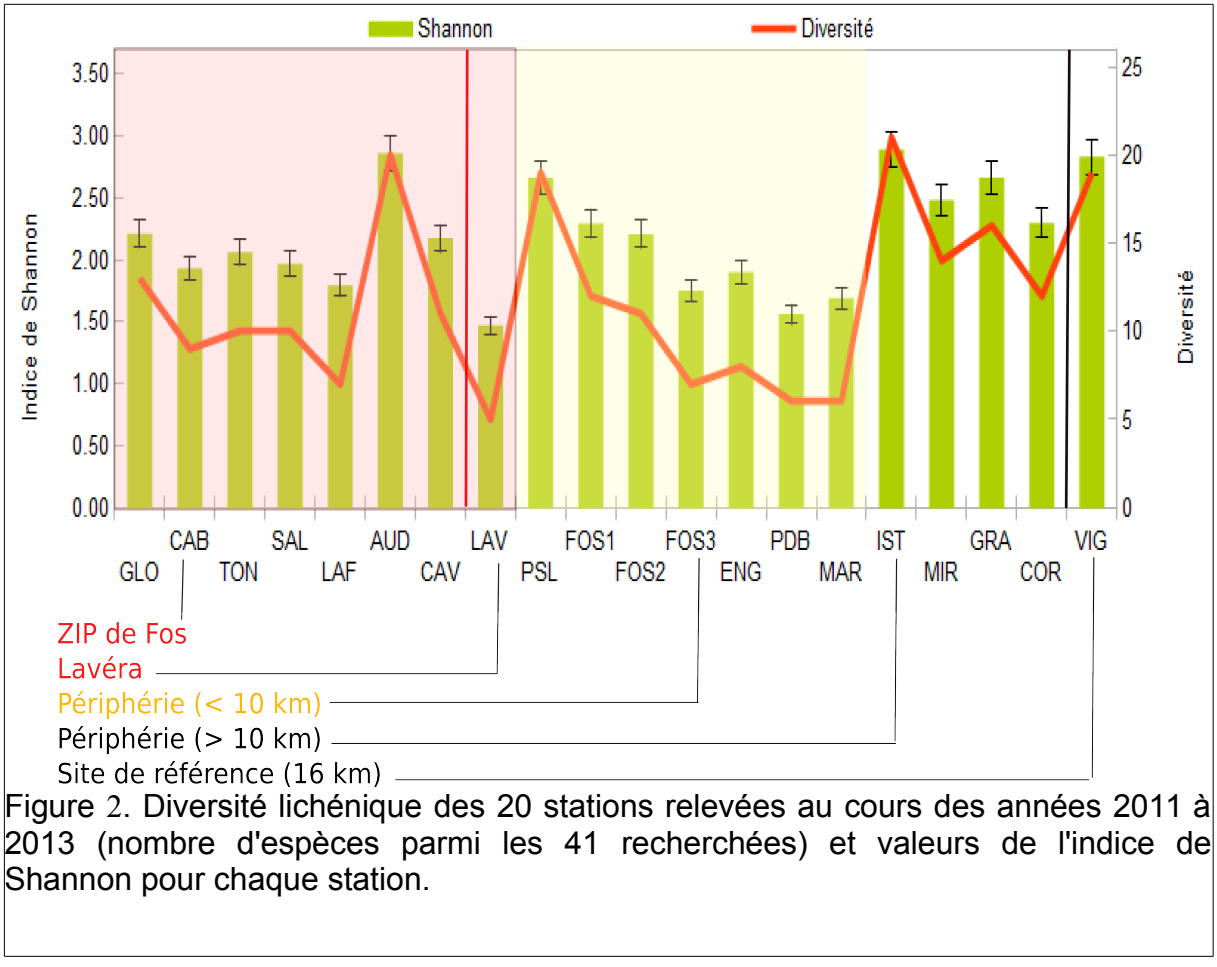

Figure 2. Diversité lichénique des 20 stations relevées au cours des années 2011 à 2013 (nombre d'espèces parmi les 41 recherchées) et valeurs de l'indice de Shannon pour chaque station.

faible que *Xanthoria sp*. Ces espèces sont fréquemment rencontrées dans les milieux fortement perturbés et anthropisés [7, 16]. Par ailleurs, certains traits fonctionnels évoluent en fonction de la situation géographique des stations, avec notamment une augmentation des espèces acidophiles (*Chrysotrix candelaris*, *Flavoparmelia caperata*, *Parmelina tilacea* et *Parmotrema perlatum*) avec l'éloignement à la ZIP, phénomène déjà observé dans une étude menée à proximité d'une cimenterie en Slovaquie [16]. De même, une augmentation des espèces toxitolérante, résistantes aux pollutions atmosphériques, est observée sur les stations situées dans la ZIP ou dans un rayon de 10 km autour du complexe industrialo-porturaire.

L'indice de Shannon, présenté dans la Figure 2, suit une évolution identique à celle observée pour la diversité lichénique. La station du Vigueirat (VIG), située à 16 km de la ZIP et éloignée de toute autre source de pollution, présente l'indice de Shannon le plus élevé (2,88) avec un total de 20 espèces relevées sur le site. Ce résultat confirme la grande diversité de ce site, avec la présence de lichens fruticuleux (*Evernia prunastri*) et foliacés tel que *Parmelia tiliacea* ou *Parmotrema perlatum* reconnus comme sensibles à la pollution atmosphérique. Ces espèces sont aussi présentes sur les stations d'Istres (IST) et Miramas (MIR), situées à plus de 10 km de la ZIP. Au contraire, les stations situées dans la ZIP ou à moins de 10 km présentent un indice de Shannon compris entre 2,01 et 2,06 significativement plus faible ($p < 0,05$) que celui mesuré sur les stations éloignées à plus de 10 km.

La diversité et la biologie des lichens met donc ici 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 de l'IPA varient entre 20,2 et 109,7 (Figure 3) et l'indice écologique Q_i de chaque espèce est compris entre 10 (*Ramalina fastigiata*) et 20 (*Hypotrachyna revoluta*). L'IPA a été divisé en 5 catégories relatives à la qualité de l'air et permettant ainsi de distinguer les sites faiblement à fortement perturbés à partir des relevés lichéniques effectués sur chaque station [8, 17] :

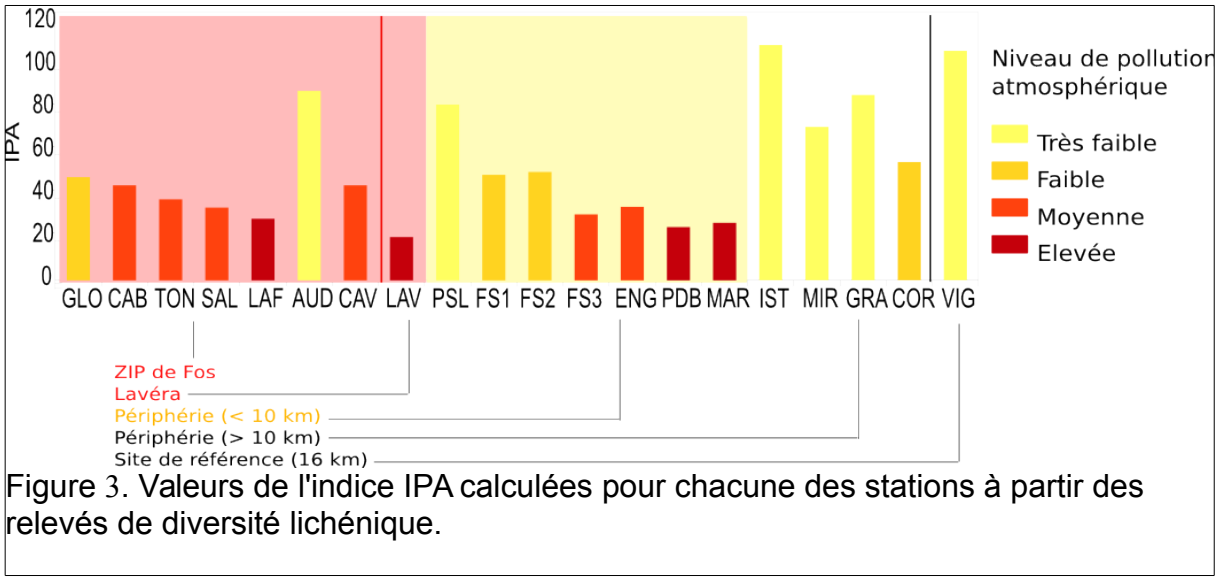

Figure 3. Valeurs de l'indice IPA calculées pour chacune des stations à partir des relevés de diversité lichénique.

- Catégorie 1 : 0 < IPA < 15. Aucune station ne présente un IAP inférieur à 15 caractéristique d'une pollution atmosphérique très élevée et d'un milieu extrêmement perturbé ;
- Catégorie 2 : 15 < IPA < 30. 4 stations, dont un site situé dans la ZIP de Fos (LAF), le site du complexe pétrochimique de Lavéra (LAV) ainsi que 2 sites en périphérie de ce complexe (PDB, MAR) sont caractérisés par un IAP inférieur à 30 et synonyme d'une pollution atmosphérique avérée et élevée. Deux de ces stations concernent des zones d'habitation et met en évidence une possible exposition de ces populations aux pollutions atmosphériques ;
- Catégorie 3 : 30 < IPA < 45. 6 stations essentiellement situées dans la ZIP de Fos (CAB, TON, SAL, CAV) à proximité d'importants sites industriels (pétrochimique, sidérurgique et incinérateur) ainsi que 2 stations situées à moins de 10 km de la ZIP (ENG, FOS3), en zone résidentielle, présente une pollution atmosphérique modérée ;
- Catégorie 4 : 45 < IPA < 60. Cette catégorie concerne les sites présentant une qualité de l'air relativement bonne, les zones périphériques (FOS1 et FOS2) ainsi que la ville de Cornillon située au nord du territoire à 21 km du centre de la ZIP présente une faible altération de la qualité de l'air ;
- Catégorie 5 : IPA > 60. 6 sites situés presque exclusivement à plus de 10 km de la zone industrialo-portuaire présentent une très bonne qualité de l'air, la diversité lichénique ne semble pas impactée par une éventuelle pollution atmosphérique.

Ainsi, la bioindication lichénique, permettant de déterminer les cortèges lichéniques et d'évaluer 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. L'éloignement géographique à la ZIP de Fos, à l'origine d'émissions industrielles et routières, présente une corrélation linéaire positive avec l'IPA (R^2 = 0,57, $p < 0,05$). Des résultats similaires ont été observés sur des travaux menés sur des sites industriels ou des zones fortement urbanisées présentant de fortes pressions anthropiques [17-19].

3.2. Mesures d'imprégnation 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 particulièrement variables d'une station à l'autre, avec un rapport entre station la plus exposée et station la moins exposée qui atteint 14 en 2011, puis 23 en 2012, pour redescendre à 8 en 2013. Cette variabilité géographique est particulièrement marquée pour les stations situées en zone industrialo-portuaire, avec des teneurs en HAP globalement comprises entre 300 et 3 000 $\mu g \cdot kg^{-1}$ (Figure 4a). Si on excepte le cas particulier de Port-Saint-Louis-du-Rhône (1 165 à 2 034 $\mu g \cdot kg^{-1}$), les valeurs rencontrées dans les villes avoisinantes sont élevées mais présentent moins de disparités avec des concentrations allant de 237 à 620 $\mu g \cdot kg^{-1}$. Enfin, les sites plus éloignés sont aussi homogènes mais généralement moins élevés que les stations périphériques avec des niveaux compris entre 108 et 374 $\mu g \cdot kg^{-1}$.

L'impact de certaines activités industrielles locales semble se traduire à la fois au niveau des teneurs totales en HAP, et sur la variabilité inter-stations. La Figure 4a

montre bien le lien entre teneurs en HAP et proximité des sites industriels. Les émissions industrielles dans la ZIP de Fos et à Lavéra sont multiples, fixes et souvent canalisées au travers de cheminées pouvant atteindre 120 m de haut, ainsi les panaches peuvent atteindre de manières très différentes deux stations pourtant géographiquement proches. La variabilité géographique des stations en zone industrielle peut donc s'expliquer par les conditions micrométéorologiques ainsi que l'environnement immédiat des stations (couvert végétal, bâtiments, nature des émissions proches…).

Les variations inter-annuelles 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 (FOS2-Mazet) et 2,6 (VIG-Vigueirat), 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 Figure4a 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), mais que la plupart d'entre elles ont ensuite dépassé en 2013 les valeurs de 2011. Les variations inter-annuelles des stations en zone industrielle sont moins cohérentes les unes avec les autres, traduisant là 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 $\mu g \cdot kg^{-1}$ conduisant à un moindre écart entre stations industrielles et périphériques.

Peu de documentation témoignent 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 [3,20-22]. En milieu urbain, Augusto *et al.* (2010) [23] indique des niveaux en HAP dans les

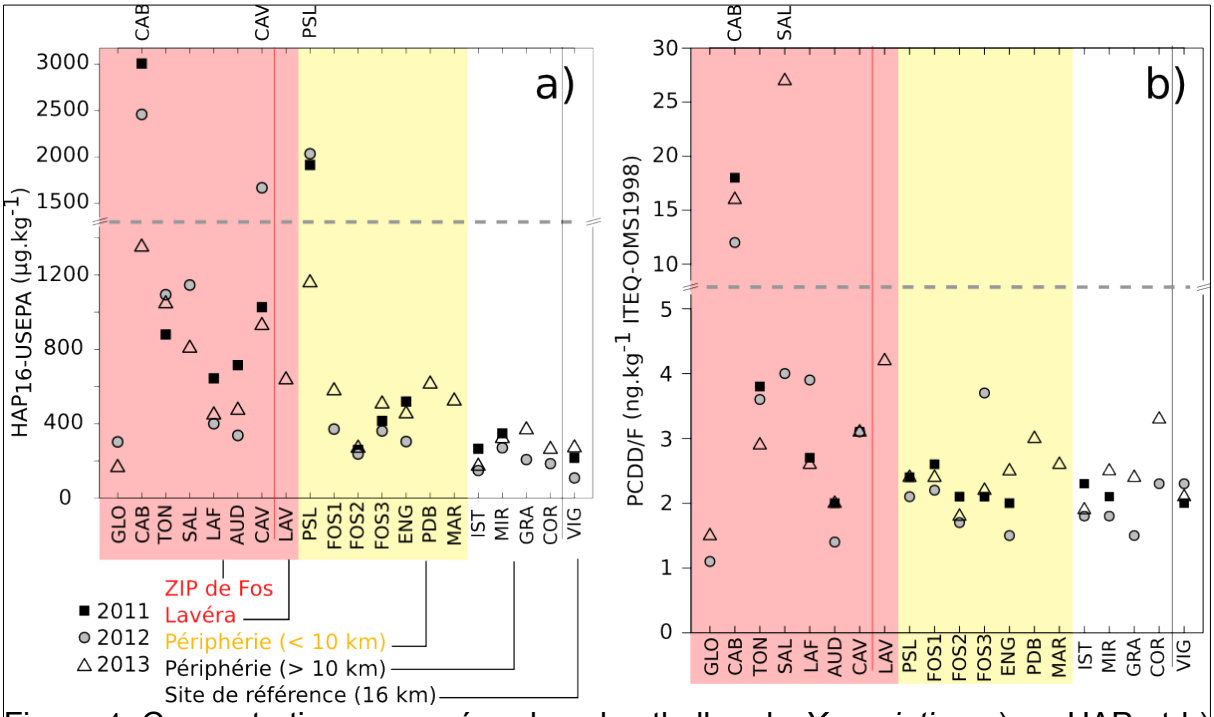

Figure 4. Concentrations mesurées dans les thalles de *X. parietina* a) en HAP et b) en PCDD/F pour les 3 années de suivi (2011 à 2013), dans la ZIP de Fos ou Lavéra (fond rose), en périphérie < 10 km (jaune) et à une distance > 10 km (blanc).

thalles de *X. parietina* compris entre 167 et 256 µg·kg^{-1} (zone urbaine et industrielle, Sétubal, Portugal) et Domeño *et al.* (2006) [24] environ 340 µg·kg^{-1} (zone urbaine, Saragosse, Espagne), soit des niveaux comparables à ceux retrouvés dans la présente étude pour les stations les plus éloignées des sites industriels dont certains sont situés en dehors des centres urbains (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 µg·kg^{-1} selon les années. Celle-ci présente généralement le niveau le plus bas mesuré, et constitue une référence locale intéressante car éloignée d'au moins 15 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 4b. Les niveaux rencontrés pour les 20 stations étudiées sur les 3 années de suivi sont relativement stables, et compris entre 1,1 et 27 $ng_{ITEQ}·kg^{-1}$. Comme dans le cas des HAP, on trouve une plus grande disparité des concentrations dans les thalles de *X. parietina* prélevés au sein des zones industrielles avec notamment deux stations dépassant 10 $ng_{ITEQ}·kg^{-1}$ (CAB en 2011, 2012, 2013 et SAL en 2013). Elles sont toutes les deux localisées dans le secteur du Caban et témoignent d'un impact localisé lié à l'activité industrielle 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 comparables et légèrement inférieurs aux sites industriels, étant compris entre 1,5 et 3,0 $ng_{ITEQ}·kg^{-1}$ pour la plupart.

Les évolutions inter-annuelles sont limitées en intensité, le rapport entre années les plus fortes et les plus faibles allant de 1,0 à 1,8 pour toutes les stations exceptée celle des Salins (SAL : 6,8). Elles sont comparables à celles observées pour les HAP pour les stations périphériques, avec une légère baisse en 2012 par rapport à 2011, puis une augmentation en 2013 qui conduit aux niveaux les plus élevés depuis le début du suivi (Figure 4b).

Les résultats de mesures des PCDD/F dans les lichens sont particulièrement rares dans la littérature [3, 5, 6, 25]. Ils sont toutefois cohérents avec les mesures réalisées depuis 15 ans par Giraudeau (2009) [5]autour d'incinérateurs à ordures ménagères ou en site reculé. D'autre part, Augusto *et al.* (2004, 2009) [3, 25] présentent des résultats de mesure de PCDD/F dans les thalles de *X. parietina* plus élevés, compris entre 73 et 1 913 ng·kg^{-1} (en moyenne 428 ng·kg^{-1}) dans des zones densément peuplées et industrialisées (péninsule de Sétubal, Portugal). Pour comparaison, les résultats obtenus ici dans la zone de Fos exprimés en ng·kg^{-1} varient entre 29 ng·kg^{-1} (VIG en 2011) et 851 ng·kg^{-1} (SAL en 2013). Cela indique des niveaux parfois élevés dans la ZIP de Fos, mais qui semblent décroître rapidement avec l'éloignement. La valeur médiane pour la présente étude est comprise entre 69 et 74 ng·kg^{-1} pour un total de 50 mesures sur l'ensemble du suivi 2011-2013 dans la zone de Fos. La moyenne des concentrations relevées varie entre 110 et 150 ng·kg^{-1} selon les années, augmentée par les stations les plus impactées (CAB en 2011, 2012, 2013, SAL et LAV en 2013) et ne trouve donc pas de signification ici.

3.2.3. Métaux et métalloïdes

De manière générale, il existe moins de disparités dans les valeurs des concentrations en métaux mesurées dans les thalles de *X. parietina* que pour les HAP ou les PCDD/F. Comme le montre la Figure 5 pour le cadmium (Cd), le plomb (Pb), et le zinc (Zn), les stations les plus éloignées des activités industrielles et logistiques présentent une bioaccumulation nettement inférieure à celles situées dans un rayon de 10 km de la ZIP. Pour ces deux dernières catégories, les niveaux sont relativement proches en Cd et Pb (Figure 5), ce qui semble indiquer une dispersion ou des origines différentes selon le type de polluant considéré (HAP, PCDD/F, métaux). Les variations inter-annuelles ne présentent aucune tendance particulière sur la période étudiée, quel que soit le type de station considérée.

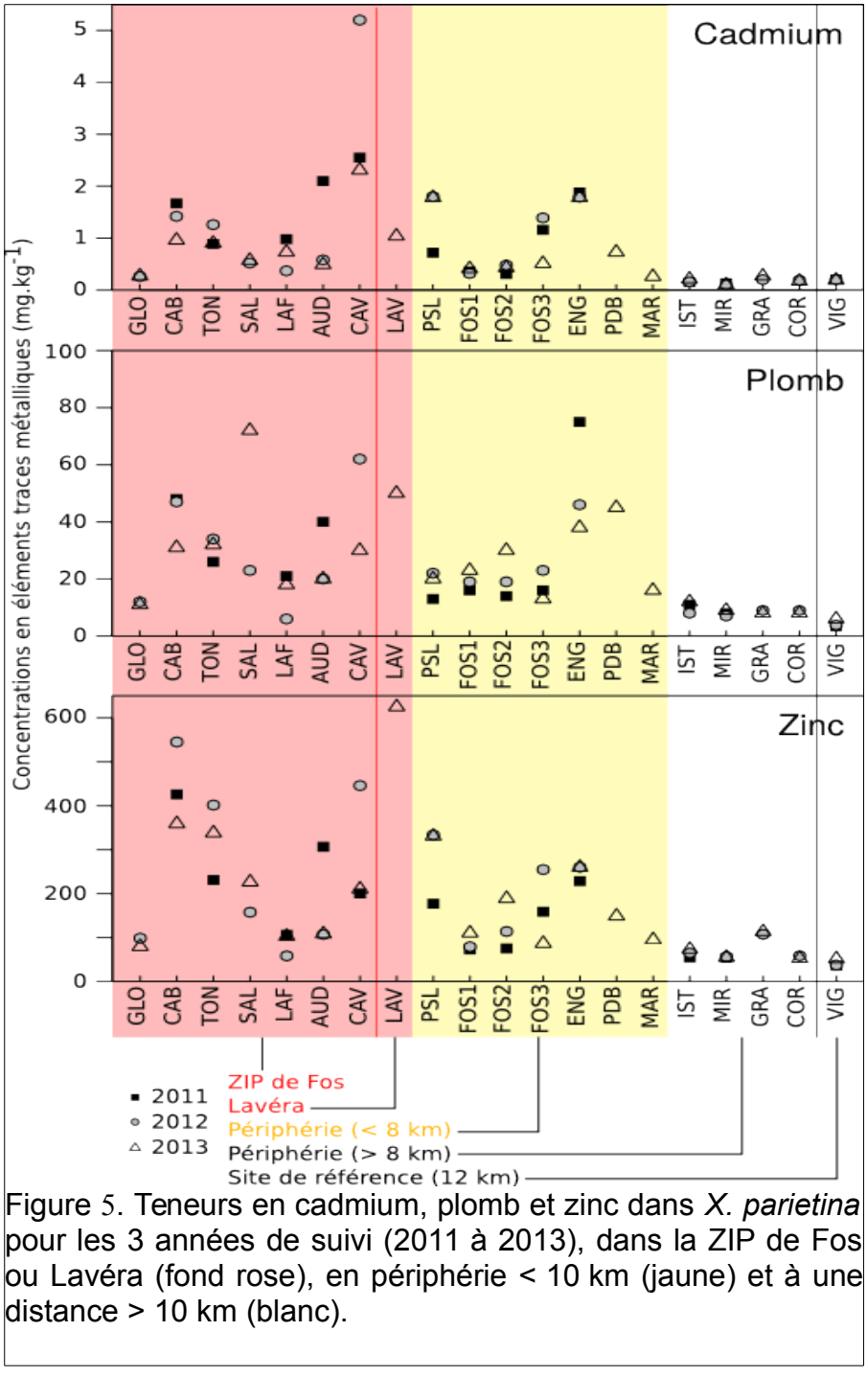

Figure 5. Teneurs en cadmium, plomb et zinc dans *X. parietina* pour les 3 années de suivi (2011 à 2013), dans la ZIP de Fos ou Lavéra (fond rose), en périphérie < 10 km (jaune) et à une distance > 10 km (blanc).

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 (Dunkerque) et une zone urbaine (Lille) par Occelli *et al.* (2013) [26]. 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 l'antimoine (Sb) et le plomb (Pb) présentent des valeurs légèrement inférieures à Fos comparé à 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 [26], ces zones étant beaucoup plus densément peuplées que la région de Fos. Les valeurs moyennes mesurées sur le territoire étudié sont également largement supérieures aux valeurs de référence employées par Occelli *et al.* (2013) [26] ou par Bargagli et Nimis (2002) [27], excepté pour le cobalt (Co).

Ces résultats montrent une analogie entre les zones industrialo-portuaires, qui semblent soumises à des problématiques similaires. L'imprégnation des 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 reste encore peu connue et insuffisamment étudiée.

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

Tableau III. Résultats des mesures en métaux et métalloïdes réalisées lors des trois années de suivi sur l'ensemble des stations de la zone de Fos et de ses environs (en $mg \cdot kg^{-1}$, n = 50), comparés aux valeurs mesurées dans la communauté urbaine de Dunkerque (CUD) et la communauté urbaine de Lille (CUDL) [26].

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 à Fos-sur-Mer, même lorsqu'il s'agit de zones industrielles méditerranéennes [28-31]. Les niveaux rencontrés en Slovaquie aux abords de la cimenterie évoquée précédemment sont également nettement moins élevés [16]. En revanche, Hissler *et al.* (2008) [32] retrouvent des teneurs semblables au Luxembourg dans une zone à la fois urbanisée et industrialisée par une activité sidérurgique importante et la présence d'incinérateurs.

4. Discussion

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

	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 IV. Corrélations entre concentrations en contaminants (ETM, HAP et PCDD/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 $R^2 > 0,5$ ($p < 0,01$).

HP = hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) ; D/F = dioxines et furanes (PCDD/F).

Les résultats de cette étude ont montré une influence importante des émissions anthropiques sur l'accumulation des polluants atmosphériques dans les lichens. L'influence de la zone industrialo-portuaire de Fos-sur-Mer sur son périmètre et au moins sur les zones habitées alentour (Fos-sur-Mer, Port-Saint-Louis, Martigues, Port-de-Bouc) semble également mise en évidence pour l'ensemble des contaminants recherchés dans l'imprégnation des lichens. D'après les données IREP (INERIS, 2012, http://www.pollutionsindustrielles.ecologie.gouv.fr/IREP/), la ZIP de Fos regroupe les principaux émetteurs du département (incinérateurs, activités pétrochimiques et sidérurgiques) de polluants métalliques (8866 kg de Zn, 5522 kg de Pb, 9439 kg de Ni, 100 kg de Cd en 2012), de dioxines (3,5 g ITEQ en 2012 émis par la ZIP) et de HAP (2196 kg en 2012 émis par la ZIP).

Les coefficients de corrélation R^2 entre ETM calculés sur l'ensemble des mesures (N = 50) apparaissent 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 ETM 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 ETM, 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,

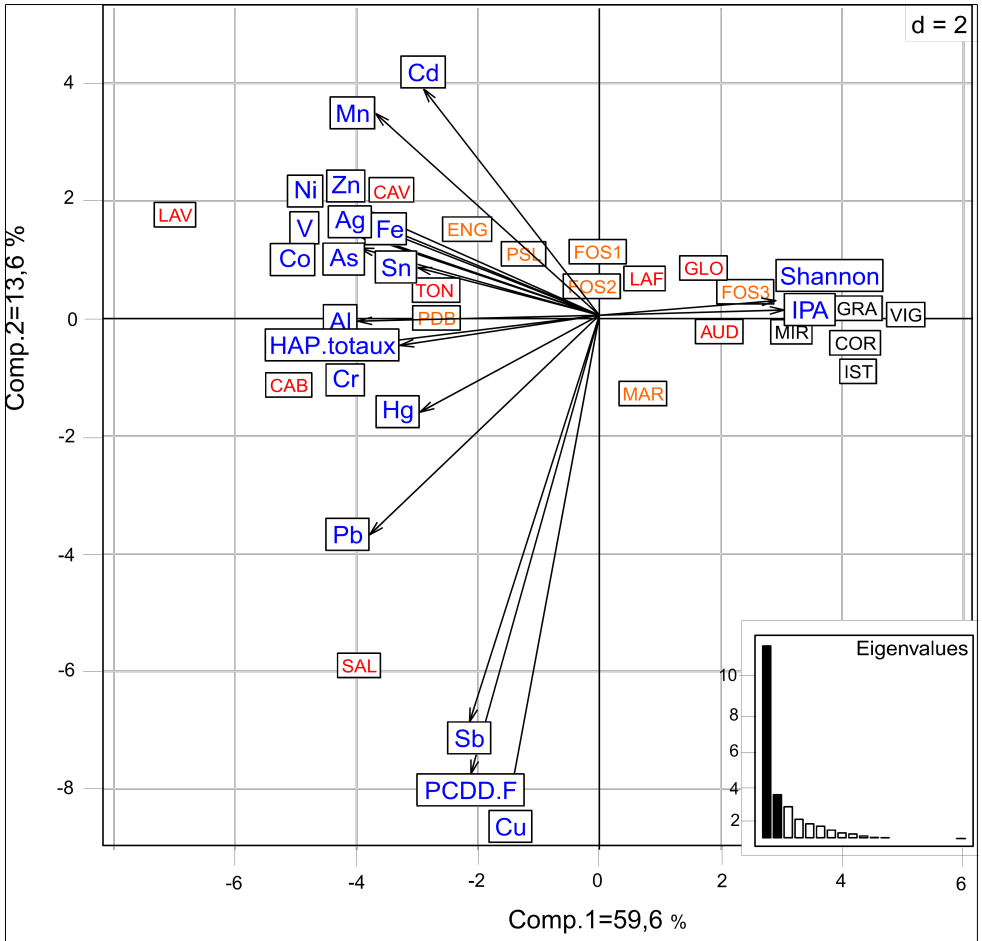

Figure 6. Analyse en composantes principales (ACP) de la diversité lichénique (IPA et Shannon) et de l'imprégnation de *X. parietina* aux divers contaminants recherchés en relation avec les différentes stations échantillonnées (à partir des moyennes sur les 3 ans de suivi, N = 20).

centrée sur la ZIP de Fos et le complexe de 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/particule, spéciation) et la capacité de *X. parietina* à les assimiler.

D'autre part, certains contaminants trouvent malgré tout 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 6. Ceci peut s'expliquer dans le cas du Cu par son action de catalyseur potentiel pour la formation des PCDD/F [6]. Le cas des PCDD/F autour de la ZIP de Fos reste 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).

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, 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 par exemple, demande, de plus, une connaissance nettement meilleure des émissions des sites industriels et de la micrométéorologie sur les stations étudiées.

4.2. Diversité lichénique et bioaccumulation pour évaluer l'impact environnemental des émissions anthropiques de la ZIP de Fos

		HAP	PCDDF	Pb	Cd	Zn	Distance
IPA	R	-0,30	-0,24	-0,56	-0,28	-0,39	0,57
	p	0,205	0,315	0,010	0,239	0,089	0,008
Shannon	R	-0,25	-0,22	-0,53	-0,22	-0,42	0,49
	p	0,283	0,345	0,016	0,351	0,06	0,027
Distance	R	-0,46	-0,17	-0,56	-0,49	-0,46	-
	p	0,042	0,481	0,009	0,029	0,042	-

Tableau V : Corrélations (coefficients R) et valeurs-p correspondantes entre la bioaccumulation des principaux polluants émis par la ZIP, les indices de diversité (IPA et Shannon) et la distance à la ZIP (calculées d'après les données moyennées sur les 3 années de suivi, N = 20). Les cellules grisées indiquent des corrélations présentant une valeur-p < 0,05.

Il apparaît très nettement que la diversité lichénique et les indices écologiques tels que l'IAP ou l'indice de Shannon sont inversement corrélés à la bioimprégnation des polluants atmosphériques dans *X. parietina* (Figure 6, Tableau V). Il est ainsi mis en évidence une grande diversité lichénique ainsi qu'un IAP de bonne qualité pour les stations les plus excentrées de la ZIP (IST, MIR, GRA, COR, VIG). La flore lichénique a donc été fortement altérée par les émissions industrielles et routières de la ZIP de Fos avec un faible nombre d'espèces rencontrées sur cette zone. Les PCDD/F sont dans la ZIP de Fos majoritairement émis par le complexe sidérurgique ArcelorMittal

(INERIS,2012, http://www.pollutionsindustrielles.ecologie.gouv.fr/IREP/), 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 10 espèces observées.

Les corrélations négatives entre la bioimprégnation de plusieurs ETM dans *X. parietina* et la diversité lichénique et l'IAP des stations sont significatives comme le montre le Tableau V pour Pb. Elles sont semblables pour les éléments As et Co, et même plus élevées pour Al, Ni, Sn et V (R compris entre -0,6 et -0,7). 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 positive entre la bioimprégnation des HAP, du Pb, Zn et Cd dans *X. parietina* 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 à bien pour origine les activités industrielles et connexes (trafic maritime et routier) de la ZIP de Fos. 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 bioindication et mesure de bioaccumulation, notamment sur des zones à fortes pressions anthropiques responsables de perturbations environnementales [10, 16, 19, 26].

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 (ETM, HAP, PCDD/F) dans une espèce de lichen épiphyte (*X. parietina*) sur 3 années consécutives et la mesure de bioindication par les lichens sur un territoire intercommunal comprenant l'une des plus grande 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 ici, mais aussi de pointer certains axes de travail nécessaires pour affiner les interprétations. Le suivi annuel de la bioaccumulation n'a montré que peu de variations, indiquant que la fréquence de celui-ci peut être abaissé pour une partie des stations au moins.

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 leur croisement et de leur interprétation.

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 ce type d'environnement, avec la présence simultanée de nombreux contaminants issus de sources nombreuses et variées. A l'image des nombreux travaux réalisés dans les grands centres urbains, les milieux

fortement industrialisés tels que les ZIP de Fos et de Dunkerque en France par exemple requièrent aujourd'hui une attention accrue et intégrée.

6. Remerciements

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 avoir permis le bon déroulement de l'étude. Les auteurs remercient également la Réserve Naturelle Nationale des Marais du Vigueirat pour avoir fourni un accès et un accompagnement sur le territoire de la réserve.

7. Références

[1] Van Haluwyn C, Lerond M. Guide des Lichens - Lechevalier Ed., Paris, 1993 : 344 p.

[2] Conti ME, Cecchetti G. Biological monitoring : lichens as bioindicators of air pollution assessment - a review - Environ. Poll., 114, 3, 2001 :471-492.

[3] Augusto S, Maguas C, Branquinho C. Understanding the performance of different lichen species as biomonitors of atmospheric dioxins and furans: potential for intercalibration, Ecotoxicology, 18, 2009 : 1036-1042.

[4] Guidotti M, Stella D, Owczarek M, Marco AD, Simone CD. Lichens as polycyclic aromatic hydrocarbon bioaccumulators used in atmospheric pollution studies – J. Chromatogr. A, 985, 2003 : 185-190.

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

[6] Denys S, Gombert D. 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, 2009.

[7] Llop E, Pinho P, Matos P, Pereira MJ, Branquinho C. The use of lichen functional groups as indicators of air quality in a Mediterranean urban environment – Ecol. Indicators, 13, 1, 2012 : 215-221.

[8] Agnan Y. Bioaccumulation et bioindication 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), 2013.

[9] Van Haluwyn C, Lerond M. Les lichens et la qualité de l'air, évolution méthodologique et limites - Ministère de l'Environnement, Paris, 1986.

[10] Stamenkovic S, Cvijan M, Arandjelovic M. Lichens as bioindicators of air quality in Dimitrovgrad (south-eastern Serbia) - Archives Biol. Sci., 62, 3, 2010 : 643-648.

[11] Wirth V. Zeigerwerte von Flechten. – In : Ellenberg, H. (Hrsg.), Zeigerwerte von Pflanzen in Mitteleuropa. Scripta Geobotanica XVIII, Goltze-Verlag, Göttingen, 1992 : 215-237.

[12] Shannon CE, Weaver W. The mathematical theory of communication – University of Illinois Press, Urbana, 1963 :117 p.

[13] LeBlanc SCF, Sloover JD. Relation between industrialization and the distribution and growth of epi-phytic lichens and mosses in Montreal - Canadian J. Botany, 48, 1970 : 1485-1496.

[14] R Development Core Team. R: A language and environment for statistical computing – R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria, 2013.

[15] Van Haluwyn C, Asta J, Gavériaux JP. Guide des lichens de France : lichens des arbres – Belin, 2009 : 231 p.

[16] Paoli L, Guttová A, Grassi A, Lackovičová A, Senko D, Loppi S. Biological effects of airborne pollutants released during cement production assessed with lichens (SW Slovakia) – Ecol. Indicators, 40, 2014 : 127-135.

[17] Gombert S, Asta J, Seaward MRD. 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) – Sci. Total Environ., 324, 1-3, 2004 :183-199.

[18] Blasco M, Domeño C, Nerin C. 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 - Anal. Bioanal. Chem., 391, 2008 : 759-771.

[19] Branquinho C, Gaio-Oliveira G, Augusto S, Pinho P, Maguas C, Correia O. Biomonitoring spatial and temporal impact of atmospheric dust from a cement industry – Environ. Poll., 151, 2, 2008 : 292-299.

[20] Nimis P, Andreussi S, Pittao E. The performance of two lichen species as bioaccumulators of trace metals – Sci. Total Environ., 275, 2001 : 43-51.

[21] Schrlau JE, Geiser L, Hageman KJ, Landers DH, Simonich SM. Comparison of lichen, conifer needles, passive air sampling devices, and snowpack as passive sampling media to measure semi-volatile organic compounds in remote atmospheres – Environ. Sci. Technol., 45, 24, 2011 :10354-10361.

[22] Augusto S, Maguas C, Branquinho C. Guidelines for biomonitoring persistent organic pollutants (POPs), using lichens and aquatic mosses – A review – Environ. Poll., 180, 2013 : 330-338.

[23] Augusto S, Maguas C, Matos J, Pereira MJ, Branquinho C. Lichens as an integrating tool for monitoring PAH atmospheric deposition : A comparison with soil, air and pine needles – Environ. Poll., 158, 2, 2010 : 483-489.

[24] Domeño C, Blasco M, Sánchez C, Nerín C. A fast extraction technique for extracting polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from lichens samples used as biomonitors of air pollution: Dynamic sonication versus other methods - Anal. Chim. Acta, 569, 2006 :103-112.

[25] Augusto S, Pinho P, Branquinho C, Pereira MJ, Soares A, Catarino F. Atmospheric dioxin and furan deposition in relation to land-use and other pollutants : A survey with lichens - J. Atmos. Chem., 49, 2004 : 53-65.

[26] Occelli F, Cuny MA, Devred I, Deram A, Quarré S, Cuny D. Etude de l'imprégnation de l'environnement de trois bassins de vie de la région Nord-Pas-de-Calais par les éléments Traces Métalliques – Poll. Atmos., 220, 2013.

[27] Bargagli R, Nimis PL. Guidelines for the use of epiphytic lichens as biomonitors of atmospheric deposition of trace elements. Monitoring with Lichens – Monitoring

Lichens - (Kluwer/NATO Science Series, Earth and environmental sciences, Dordrecht) 2002 : 295-299.

[28] Scerbo R, Possenti L, Lampugnani L, Ristori T, Barale R, Barghigiani C. Lichen (*Xanthoria parietina*) biomonitoring of trace element contamination and air quality assessment in Livorno Province (Tuscany, Italy) – Sci. Total Environ., 241, 1999 : 91 - 106.

[29] Scerbo R, Ristori T, Possenti L, Lampugnani L, Barale R, Barghigiani C. Lichen (*Xanthoria parietina*) biomonitoring of trace element contamination and air quality assessment in Pisa Province (Tuscany, Italy) – Sci. Total Environ., 286, 2002 : 27-40.

[30] Brunialti G, Frati L. Biomonitoring of nine elements by the lichen *Xanthoria parietina* in Adriatic Italy: A retrospective study over a 7-year time span – Sci. Total Environ., 387, 2007 : 289-300.

[31] Demiray AD, Yolcubal I, Akyol NH, Cobanoglu G. Biomonitoring of airborne metals using the Lichen *Xanthoria parietina* in Kocaeli Province, Turkey - Ecol. Indicators, 18, 2012 : 632-643.

[32] Hissler C, Stille P, Krein A, Geagea ML, Perrone T, Probst JL, Hoffmann L. 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* – Sci. Total Environ., 405, 2008 :338-344.