

**Etude préliminaire de la répartition de l'Iode 129 dans
l'environnement de l'usine de retraitement de La Hague à
l'aide d'une mousse terrestre : *Homalotecium sericeum*.**

Gilbert PIGREE, Jérôme GUILLEVIC et Laurent PONCET

Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest,
138, rue de l'Eglise – F. 14 200 Hérouville-Saint-Clair)

Mots clés : *Homalotecium sericeum*, Iode 129, la Hague, mousses

Key words : *Homalotecium sericeum*, Iodine 129, la Hague, mosses

Résumé : L'iode 129 a une demi-vie de 16 millions d'années et est susceptible de s'accumuler à long terme dans l'environnement ; ses caractéristiques physiques et chimiques sont examinées ainsi que ses différentes origines, en particulier les activités humaines ; parmi celles-ci, le site de la Hague a fait l'objet d'un suivi par l'analyse de 18 échantillons de mousses prélevés dans un rayon de 5 kilomètres, à comparer avec un échantillon de référence provenant de la région de Caen.

Abstract : Iodine 129 has a half-life of 16 million years and can therefore be subject to long term accumulation in the environment; its physical and chemical properties are reviewed as well as its different origins, in particular human activities; the la Hague plant has been monitored by the analysis of 18 moss samples to be compared with a reference sample from the Caen area.



Introduction

Parmi les isotopes radioactifs de l'iode qui peuvent être décelés dans l'environnement, l'iode 129 (^{129}I) est celui qui présente la demi-vie la plus longue (16 millions d'années). Son accumulation à l'échelle planétaire est donc possible faute d'une bonne élimination par décroissance physique. Les estimations de production mondiale atteignent 2.10^6 curie (Ci) pour 2060 et on admet que la quantité d'iode 129 présent dans l'environnement sera voisine de 2.10^4 Ci soit environ 120 tonnes (Saas *et al.*, 1977).

Produit naturellement, l'iode 129 est aussi présent dans l'environnement du fait d'activités anthropogéniques (essais de l'arme atomique et chaîne du combustible nucléaire).

S'il n'est pas décelable dans l'environnement des centrales nucléaires (AEN, 1980) sauf en cas d'accident comme celui de Tchernobyl (Chant L.A., 1996), l'élévation du niveau d'iode 129 dans l'environnement d'une usine de retraitement a été avancée à de multiples reprises : Brauer et Strebin, 1982 ; Kantelo et al., 1982 ; Stewart et Wilkins, 1985 ; Muramatsu et Ohmomo, 1986 ; etc. De même et plus récemment, dans la région du Nord-Cotentin où se situe l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague¹, la présence d'iode 129 a été soulignée à partir de prélèvements de mousses terrestres de l'espèce *Bryum argenteum* effectués fin 1994 (CRIIRAD, 1995).

Parce que ^{129}I est très mobile, qu'il y a actuellement peu d'informations sur sa distribution dans les différents compartiments de l'environnement, qu'il est susceptible de contribuer d'une façon appréciable à l'exposition de vastes ensembles de populations (AEN, 1980) et que sa présence dans la région de La Hague n'est abordée que depuis quelques années, nous avons trouvé intéressant de mener une campagne de mesures à l'aide de mousses terrestres, ceci afin d'actualiser les données qui ont pu être obtenues par le passé.

L'intérêt d'utiliser des mousses terrestres comme radio-indicateurs de l'air a été clairement démontré par le passé, notamment par Bovard et Grauby (1967) suite aux essais atmosphériques de l'arme atomique.

Ce travail présente les résultats d'une étude de la répartition (cartographie) du radioélément autour de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague à l'aide de 18 échantillons de mousses terrestres utilisées comme bio-iaccumulateurs.

En complément de la mesure d'iode 129, le dosage de l'iode total (essentiellement stable : ^{127}I) a été effectué. Par ailleurs, des informations sur l'iode et les mousses terrestres sont exposées dans le but de clarifier des facteurs susceptibles de faire varier les activités en iode 129 dans l'environnement et dans l'indicateur considéré. Une réflexion est également menée sur l'espèce indicatrice retenue par le passé car il convenait de s'assurer qu'elle constituait toujours un bio-indicateur fiable pour cette étude.



¹ Dite « usine COGEMA La Hague » ; située dans le Nord-Cotentin (département de la Manche ; 50)
Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 21

I) L'iode 129, un isotope radioactif

I.1) Généralités sur l'iode

L'iode est un élément chimique (cf. tableau 1) appartenant à la famille des halogènes qui peut exister sous forme minérale et organique.

Sous forme élémentaire (I), l'iode présente un aspect légèrement métallique et ses cristaux se subliment en vapeurs violettes à la température "ordinaire". Cet élément peut se combiner à de nombreux métalloïdes et métaux. En principe, l'iode peut prendre tous les états de valence entre -1 et +7. Parmi ceux-ci, les iodures (I⁻) sont des agents d'oxydo-réduction. L'iode possède un seul isotope stable, l'iode 127 (¹²⁷I), et de nombreux isotopes radioactifs.

Les applications de certains de ses isotopes sont nombreuses et variées : chimie, pharmacie, médecine, biologie, etc. A titre d'exemple, l'iode stable sert en pharmacie pour la teinture d'iode, alors que l'iode 131

(isotope radioactif) est utilisé depuis plus de 50 ans en médecine nucléaire. Il permet, d'une part, d'étudier la morphologie et l'activité fonctionnelle de la thyroïde et, d'autre part, de traiter l'hyperthyroïdie et le cancer de la thyroïde (CSPI, 1996).

Dans l'environnement, aux côtés de l'iode 127 largement majoritaire, deux isotopes radioactifs sont couramment rencontrés. Il s'agit de l'iode 131 ($T_{1/2} = 8,02$ jours) et de l'iode 129 ($T_{1/2} = 15,7 \cdot 10^6$ ans). Tous deux sont des produits de fission du combustible.

Tableau 1: caractéristiques physiques de l'iode

Symbole	Masse atomique (g)	Solubilité dans l'eau (mg/L)	Densité (g/cm ³)	Température	
				fusion (°C)	ébullition (°C)
I	126,9	290	4,93	113,5	184,35

Source : Comment utiliser en toute sécurité les produits chimiques dangereux ; Editions Weka ; Juillet 1998.

I.2) Caractéristiques nucléaires

L'iode 129 (¹²⁹I) est un produit de fission de période 15,7.10⁶ ans qui se désintègre (émission d'un bêta moins β⁻) vers les niveaux excités du Xénon 129 (¹²⁹Xe). Il s'en suit une émission X/gamma de faible énergie (cf. tableau 2).

Le nombre de désintégrations par seconde dans un gramme d'iode 129 est de 6,41.10⁶ ; un Becquerel d'iode 129 correspond donc à une masse de 1,56.10⁻⁷ g de celui-ci.

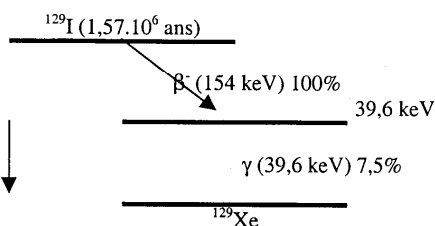


Tableau 2: émissions provenant de la désintégration de ¹²⁹I.

Emissions	Energie (en kev)	Taux d'émission (%)
β ⁻	154	100
X	29,4 + 29,8	57
	33,6 + 34,4	13,2
γ	39,6	7,46

I.3) Origine

Si initialement la production d'iode 129 est liée à des processus naturels, les niveaux enregistrés depuis 1945 amènent à considérer une origine anthropogénique liée d'abord aux essais de l'arme atomique puis à la chaîne du combustible nucléaire.

La production naturelle

L'iode 129 est issu de la fission spontanée de l'uranium 238 (²³⁸U) contenu dans les sols et les océans ainsi que de l'interaction des rayonnements cosmiques secondaires sur divers isotopes du Xénon présents dans la haute atmosphère (Edwards, 1962). Dans ce contexte, et en l'absence d'apport anthropogénique, le rapport isotopique ¹²⁹I/¹²⁷I dans l'environnement est de l'ordre de 10⁻¹² (Lebourgeois V., 1997).

La production artificielle

L'iode 129 est issu de la fission de l'uranium 235 (²³⁵U) et du plutonium 239 (²³⁹Pu) par les neutrons thermiques, soit directement comme produits de fission, soit indirectement par la désintégration d'autres produits de fission. La plupart des isotopes radioactifs de l'iode sont obtenus par décroissance β⁻ de l'étain, de l'antimoine et du tellure (Saas *et al.*, 1977).

D'après Chamberlain (1991), les explosions de l'arme atomique ont contribué à un apport en iode 129 estimé

à 2.10²⁶ atomes (environ 4.10¹¹ Bq). L'accident de Tchernobyl (mai 1986) a été une source d'émission d'iode 129 très importante (8,4.10¹² Bq).

Actuellement l'émission d'iode 129 est principalement liée à la chaîne du combustible nucléaire. L'iode 129 est produit dans le combustible des centrales nucléaires, néanmoins sa présence dans l'environnement d'un réacteur électronucléaire n'a jamais été identifiée (AEN, 1980) ; seul l'iode 131 est couramment décelé. Il faut souligner que la production d'iode 129 est faible - 0,02Ci/t - comparativement à celle des isotopes à vie courtes - 10⁶Ci/t - (Saas *et al.*, 1977).

Vu sa longue période, l'iode 129 s'accumulerait tout au long de la phase d'exploitation du combustible dans les centrales nucléaires. La principale source d'émission d'iode 129 résulte alors du retraitement des combustibles irradiés et les quantités ainsi que les mécanismes d'émission dépendent fortement du site et de la conception spécifique de l'usine.



I.4) Cas de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague

Ces installations constituent une étape de fin de chaîne du combustible nucléaire. Mises en service en 1966, elles assurent la séparation des diverses catégories d'éléments contenues dans les combustibles "usés" suivant des procédés d'extraction chimiques (procédé PUREX™).

- **Les diverses formes d'élimination**

Le procédé de traitement des iodes aboutit à leur élimination sous la forme d'effluents liquides rejetés en mer, de déchets après piégeage / conditionnement et d'effluents gazeux rejetés dans l'atmosphère.

Parmi les isotopes de l'iode relâchés avec les effluents, l'iode 129 prédomine très largement (cf. tableau 3).

De plus, les effluents liquides sont la principale forme d'élimination (cf. tableaux 4 et 6) ; ils sont dispersés dans un courant marin appelé le Raz Blanchard (au Sud-Ouest du Nez de Jobourg) à une distance de 1,7 km des côtes et à une profondeur de 28 mètres.

Tableau 3 : proportions des isotopes de l'iode rejetés en 1994 avec les effluents de l'usine de retraitement de La Hague.

rejet (nature)	iode 129	iode 131	iode 133	$\Sigma(129+131+133)$
GAZEUX (Bq)	$2,1 \cdot 10^{10}$	$4,9 \cdot 10^8$	$2,2 \cdot 10^8$	$2,17 \cdot 10^{10}$
Proportion (en %)	96,7%	2,3%	1,0%	100%
LIQUIDE (Bq)	$1,1 \cdot 10^{12}$	$3,7 \cdot 10^9$	$2,0 \cdot 10^9$	$1,106 \cdot 10^{12}$
Proportion (en %)	99,5%	0,3%	0,2%	100%

Source : données Cogéma-La Hague ; extrait du rapport final (juillet 99) du Groupe de travail n°1 du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin.

Tableau 4 : proportion d'iode 129 par forme d'élimination ; bilan pour l'usine de retraitement de La Hague en 1994.

formes d'élimination	proportion
Effluents liquides en mer	86,7%
Piégeage et conditionnement sous forme de déchets	11,6%
Effluents gazeux rejetés dans l'atmosphère	1,6%

Source : CSPI - L'iode - Mai 1996.



Les diverses formes physico-chimiques de l'iode rejeté (généralités)

Il n'a pas été possible de rassembler de données concrètes sur les formes physico-chimiques (et les proportions) spécifiquement rejetées par l'usine de retraitement de La Hague.

En général, on admet que l'iode est émis sous sept formes chimiques différentes (cf. tableau 5) et que les proportions à l'émission varient en fonction du type de

réacteurs ou selon la méthode de traitement du combustible dans le cas du retraitement (Saas *et al.*, 1977).

Dans le cas de rejets d'effluents gazeux, un nouvel équilibre chimique s'établit rapidement au contact de l'atmosphère local (cf. figure 4).

Tableau 5 : formes physico-chimiques de l'iode rejeté par les réacteurs et les usines de retraitement de combustibles.

Formes	réacteurs Graphite-gaz	réacteur à eau pressurisée	retraitement
I ₂	+	+	+
CH ₃ I	10%	2,5%	+
I	+	+	+
HI	+	+	+
HOI	+	+	+
IO ₃ ⁻			+
IO ₄ ⁻			+
autres			C ₂ H ₅ I ¹ vinyl - propyl - butyl - iso-butyl

Source : A. Saas et A. Grauby - Cycle de l'iode dans l'environnement - 1977.

Dispositif réglementaire

L'arrêté du 22 octobre 1980² indique que la valeur limite annuelle applicable aux rejets gazeux est fixée à 110 gigabecquerels pour les halogènes. Après dispersion au niveau du sol, l'activité volumique moyenne hebdomadaire ajoutée pour les "halogènes + aérosols" ne doit pas dépasser 37 millibecquerels par mètre cube (par calcul).

Pour l'élimination des halogènes avec les effluents liquides en mer, il n'y a pas d'autorisation spécifique.

Les rejets en ¹²⁹I sont comptabilisés dans l'autorisation



Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 25

annuelle des rejets des émetteurs bêta-gamma hors tritium (limite fixée à 1 700 000 GBq).

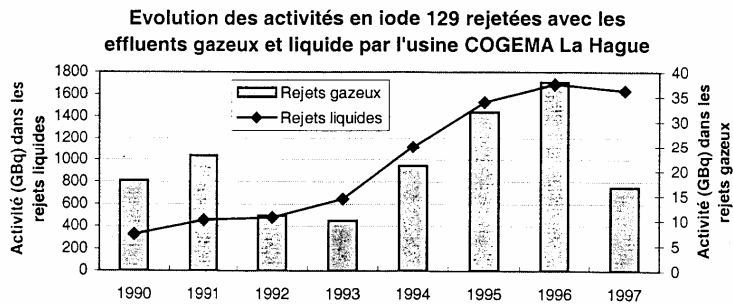
Il s'agit là d'une distinction notable avec l'usine de retraitement de Sellafield (U.K.) à laquelle sont imposées des limites de rejet par radionucléides. Cependant, des modifications devraient être apportées par le législateur français ; on parle de futures limites individualisées pour les iodes et le carbone 14.

² arrêté complété par celui du 27 février 1984.

Les rejets gazeux et liquides effectifs

Tableau 6: activités en iode 129 rejetées avec les effluents liquides et gazeux par l'usine COGEMA-La Hague depuis 1990.

	90	91	92	93	94	95	96	97
Rejets liquides (GBq)	327	455	479	646	1120	1530	1690	1630
Rejets gazeux (GBq)	18	23	11	10	21	32	38	16,7
<i>rapport des rejets liquides / gazeux</i>	18	20	44	65	53	48	45	98



I.5) Distribution de l'iode stable dans l'environnement (généralités)

D'après Saas (1980), l'iode 129 de par sa longue demi-vie se comporte dans l'environnement comme son homologue stable (¹²⁷I) avec lequel il entre en compétition. En conséquence, nous avons choisi de traiter de la distribution de l'iode stable, sujet pour lequel existe une bibliographie assez riche. Les éléments rapportés ne concernent que l'eau de mer et l'atmosphère, compartiments qui recueillent les radioéléments libérés avec les effluents de l'usine de retraitement de La Hague, les véhiculent et favorisent leur dispersion.

Particulièrement volatil, l'iode est très mobile dans l'environnement où sa répartition n'est pas uniforme : il est environ cinq fois plus abondant dans la lithosphère (partie solide de la sphère terrestre) que dans l'eau des océans. Cependant, dans l'eau de mer, l'iode semble provenir essentiellement de l'érosion terrestre, et dans la biosphère il dérive principalement des océans par la voie de l'atmosphère.

Cette volatilisation depuis l'eau de mer, aspect le plus significatif de sa géochimie, classe l'iode parmi les éléments "atmosphériques" en plus de la description qui en est faite sous la forme d'élément biophile et



hydrophile (Fuge R., 1989).

Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 26

L'iode et l'eau de mer...

Dans l'eau de mer, l'iode est présent à une concentration moyenne de 60 µg.L⁻¹. D'après Ancellin *et al.* (1979), l'iode est essentiellement sous formes anioniques solubles à l'état de valence I (iodure ; I⁻) ou V (iodate ; IO₃⁻). D'autres formes sont présentes mais à l'état de traces. Tsunogai et Sase (1969) avancent que la forme chimique qui prédomine est l'iodate puisqu'elle est la plus stable d'un point de vue de la thermodynamique.

Cependant, la température, la lumière et l'activité biologique sont des facteurs qui influent sur les formes chimiques de l'iode dans l'eau de mer. Ainsi, Tsunogai et Sase (1969) ont suggéré que dans les eaux de surface, l'iodate était converti en iodure par l'action du soleil mais aussi par des organismes utilisant des enzymes réductrices des nitrates. Dans les eaux de surface, l'iodure représenterait 50 % de l'iode total (Lebourgeois V., 1997).

Les variations spatiales sont quant à elles attribuées à des facteurs terrestres (érosion des sols), à l'activité biologique, à l'adsorption sur des métaux oxydants et aux échanges avec les sédiments (Lebourgeois V., 1997).

• L'iode et l'atmosphère...

Dans l'atmosphère, plusieurs contributions doivent être envisagées.

Les deux mécanismes majeurs qui conduisent à la formation d'iode volatil en milieu marin sont l'oxydation photochimique de I^- en I_2 et la formation de CH_3I due à l'activité microbiologique et à celles des algues (Stephenson *et al.*, 1995).

D'autre part, il est probable que des quantités appréciables d'iode soient recyclées du sol, des plantes et des eaux terrestres par volatilisation (Fuge R., 1989). Les aérosols terrestres peuvent aussi contribuer à la présence d'iode dans l'atmosphère par la remise en suspension de fines particules de sol contenant de l'iode (Hirofuni *et al.*, 1990).

D'après un rapport de l'OCDE sur l'Energie Nucléaire (AEN, 1980), les concentrations en iode dans l'atmosphère varient entre 1 et 2500 ng/m^3 ; la majorité des valeurs sont comprises entre 1 et 10 ng/m^3 . Cependant dans la région normande, Saas (1981) indique que la teneur en iode de l'air atteint 0,6 à 1

$\mu g/m^3$ (la moyenne oscillant entre 0,1 et 0,3 $\mu g/m^3$) durant les périodes, avril-mai et septembre-octobre, propices à la volatilisation depuis le sol.

Il faut noter que les pluies modifient la distribution de l'iode élémentaire (à l'état de vapeur) présent dans l'air. A ce sujet, les approches théoriques diffèrent selon que l'on admet ou non la réversibilité de la captation du gaz par les gouttes de pluies.

D'après une étude expérimentale du lavage de l'iode par la pluie (Caput *et al.*, 1993), tout se passe comme si la captation de l'iode élémentaire par les gouttes de pluie (en iodures non volatils) était irréversible. Ces mêmes auteurs précisent que ce phénomène pourrait être lié à la composition de l'eau de pluie et en particulier à son contenu en substances réductrices.

De plus, des travaux menés par Muramatsu et Ohmomo (1988) sur l'iode radioactif dans les pluies suggèrent que l'iode est essentiellement présent sous les formes chimiques IO_3^- et I^- , et que IO_3^- évolue lentement vers la forme chimique I^- (Fuge R., 1989).

Concernant les teneurs en iode de l'eau de pluie, Saas (1981) indique qu'en France la "normalité" est comprise entre 0,5 et 2,0 $\mu g/L$ à une distance de 50 km du bord de mer. Plus à l'intérieur des terres, à Cadarache (Bouches-Du-Rhone), Fournier-Bidoz *et al.* (1992) ont obtenu, d'octobre 88 à juin 90, des concentrations comprises entre 0,5 et 5,4 $\mu g/L$ (l'essentielle des teneurs étant inférieures à 3,6 $\mu g/L$). En revanche, les teneurs apparaissent plus élevées en bord de



mer, elles peuvent atteindre 10 à 12 µg/L pour la frange littorale du Cotentin (Saas A., 1981).

Par ailleurs, à partir de l'étude des transferts de l'iode contenu dans l'atmosphère au sol via les pluies, Bachhuler et Bunzl (1992) constatent que l'iode stable est déposé principalement depuis les hauts niveaux de la troposphère, de manière similaire au ⁷Be et au ¹³⁷Cs

issu des essais atmosphériques de l'arme atomique. Ces mêmes auteurs, constatent une absence de variation saisonnière dans les dépôts d'iode stable qui indiquerait que cet isotope, à la différence de ⁷Be et de ¹³⁷Cs issu des essais atmosphériques de l'arme atomique, n'est pas transféré périodiquement de la stratosphère à la troposphère.

II) Les mousses terrestres, indicateurs de contamination radioactive

II 2) Généralités sur les bio-indicateurs

La détection et le dosage directs dans l'atmosphère de polluants peuvent poser des problèmes en raison des faibles concentrations observées. Il est alors utile de faire recours à des bio-indicateurs, capables de concentrer le ou les polluant(s) recherché(s) et stabiliser les teneurs dans le temps.

Cette utilisation, destinée à évaluer l'importance d'une pollution, n'est pas récente, et de nombreuses études ont été et sont réalisées à ce sujet, soit dans l'optique de déterminer un indice synthétique de la qualité d'un écosystème (à partir des observations de modifications de la nature et de la structure d'une communauté), soit dans le but d'évaluer précisément la charge en polluants d'un écosystème (à partir des concentrations mesurées dans l'espèce indicatrice).

Parmi les bio-indicateurs étudiés, les lichens et les mousses sont reconnus depuis longtemps pour leur capacité à capter les polluants atmosphériques (métaux lourds entre autres) ainsi que pour leur longue période de rétention de ces polluants, et ceci à un degré de

concentration plus élevé que la plupart des plantes vasculaires. Par exemple, les bryophytes ont été utilisées dès les années soixante en tant qu'indicateurs de la contamination radioactive liée aux retombées des essais atmosphériques de l'arme atomique (Bovard et Grauby, 1967).

L'avantage des mousses terrestres comme bio-indicateurs est d'ailleurs souligné par Sawidis et al. (1988) qui précisent qu'elles captent bien les polluants atmosphériques de par leur grande surface aérienne et par le fait qu'elles absorbent l'humidité de l'atmosphère susceptible de contenir différents radioéléments recherchés. Ce sont donc des bio-indicateurs appropriés à ces différents types de pollutions atmosphériques (Papastcfanou et al., 1989).



II.2) Caractères généraux

Une mousse est souvent caractérisée par un coussinet qui se présente sous l'aspect de tiges feuillées fixées au sol par de fins filaments cellulaires non chlorophylliens qui ne sont pas de véritables racines, aussi les appelle-t-on rhizoïdes.

Le terme mousse est plus communément utilisé pour définir l'ordre des Bryales (appartenant à la classe des Muscinées). On observe cependant deux formes principales : les formes thalloïdes (lames vertes) et les formes feuillées (cette dernière forme ne représente qu'une faible partie des Bryophytes).

II.3) Ecologie (d'après Jahns, 1989)

A quelques exceptions près, les Bryophytes sont des plantes terrestres. Ne possédant qu'une très mince cuticule protectrice, les mousses sont sujettes à la

dessiccation et ont une prédilection pour les endroits humides et ombragés.

Elles possèdent la faculté de s'adapter à des milieux où l'éclairage est très faible (0,1% de la lumière incidente du jour est suffisante). Dépourvues de véritables racines, les mousses absorbent l'eau sur toute la surface de leurs feuilles, de leurs tiges ou de leur lame thalloïde.

Pour se protéger de la dessiccation, certaines mousses se resserrent au fur et à mesure qu'elles perdent de l'eau, entraînant ainsi un raccourcissement des faces exposées. D'autres stockent de grandes quantités d'eau dans le coussinet (ex : les *Sphaignes*) et peuvent la relarguer dans les milieux ambiants agissant ainsi comme des régulateurs d'eau.



III) Etude préliminaire ; validation d'une mousse terrestre comme bio-indicateur

III.1) Définition du programme et des moyens

Pour réaliser la cartographie dans les meilleures conditions, il convenait de s'interroger sur les qualités bio-indicatrices de la mousse terrestre initialement retenue, *Bryum argenteum*³ : Plus simplement, *Bryum argenteum* était-elle toujours présente dans la région étudiée avec une aire de répartition et une abondance sur site suffisantes pour mener cette nouvelle étude ?

Dans le cas contraire, une ou plusieurs espèces de mousses terrestres présentes dans la région de La Hague et palliants au(x) défaut(s) de *Bryum argenteum* devaient être recherchées.

Pour évaluer les qualités de bio-indicateur d'une mousse terrestre, cinq critères ont été retenus : l'ubiquité (ou l'aire de répartition), l'abondance (ou la quantité disponible sur les sites), la détermination aisée du genre et de l'espèce (ou la reconnaissance), la concentration du ou des polluant(s) recherché(s) (ou l'accumulation) et, dans une moindre mesure, la simplicité d'analyse.

Pour apprécier les qualités de bio-indicateur d'une mousse en regard de chacun des

critères retenus, l'étude préliminaire s'est appuyée sur l'expérience du laboratoire, sur deux campagnes dites "de reconnaissance" menées sur site et sur les conseils de différents spécialistes en bryologie. Les bryologues consultés étaient : le Docteur S. Deperrier et le Professeur A. Lecoite du laboratoire de botanique et de phytogéographie de

l'université de Caen, le Professeur J. Touffet du laboratoire de botanique de l'université de Rennes, le Professeur Bardat du Muséum d'Histoire Naturelle de Paris et M. R.B. Pierrot auteur de " Les Bryophytes du centre-ouest : Classification, Détermination. ".



³ Bio-indicateur utilisé par la CRII-RAD pour l'étude menée dans le cap de La Hague fin 1994.

III.2) Abandon de *Bryum argenteum*

Parmi les critères évoqués précédemment, si les deux derniers ont pu être appréciés lors de la participation du laboratoire à l'étude réalisée par la CRIIRAD (1995), en revanche, il convenait de préciser la "réponse" de *Bryum argenteum* vis à vis des autres.

Ainsi, *Bryum argenteum* a été abandonné au profit d'une autre mousse terrestre pour des raisons d'aire de répartition et d'abondance sur le lieu étudié : critères fixés pour définir les qualités d'un bio-indicateur dans le cadre de la présente étude.

III.3) Sélection d'une mousse terrestre : *Homalothecium sericeum*

Dans un premier temps, une présélection a été faite parmi les quatorze espèces recensées lors de la campagne de reconnaissance (annexe 2).

En fonction de la probabilité d'apparition de chacune des espèces et des choix faits pour l'étude menée par l'ADEME⁴ et l'université Pierre et Marie Curie (Paris VI), les six espèces suivantes ont été retenues : *Tortula muralis*, *Homalothecium sericeum*, *Hypnum cupressiforme*, *Grimmia pulvinata*, *Scleropodium purum* et *Ceratodon purpureus*.

Après consultation des différents bryologues, quatre espèces ont été rejetées du fait de la difficulté dans la reconnaissance du genre et/ou de l'espèce (par des non spécialistes) et, du manque d'abondance sur site. Les espèces éliminées sont :

- 1) *Tortula muralis* : espèce annuelle ou bisannuelle, très polymorphe en fonction de l'hygrométrie et rencontrée généralement en faible quantité.
- 2) *Ceratodon purpureus* : cosmopolite mais très polymorphe (difficilement identifiable) ; elle paraît se développer dans des milieux écologiques assez

particuliers (ex : sur les cendres après les incendies).

- 3) *Hypnum cupressiforme* : ubiquiste mais très polymorphe ; elle présente un grand nombre de sous espèces et de variétés (vivants sur des milieux écologiques différents) et pose un problème de détermination sur le terrain, même pour des bryologues.
- 4) *Grimmia pulvinata* : généralement présente en faible quantité, elle est très difficile à déterminer.

Dans un second temps, une nouvelle campagne de reconnaissance a été envisagée afin de préciser (dans la région étudiée) pour *Homalothecium sericeum* (espèce saxicole) et *Scleropodium purum* (espèce terricole), outre la fréquence d'apparition et l'abondance moyenne par site, s'il y avait accumulation ou non du radioélément recherché (¹²⁹I).

Cette campagne est intervenue le 18 mars 1998 après formation⁵ de l'équipe à la reconnaissance phylogénétique des mousses

⁴ Etude de la qualité de l'air menée de juin à novembre 1996 par l'ADEME et l'université Pierre et Marie Curie (Paris VI) sur le territoire français ; mesure des dépôts atmosphériques des métaux lourds à partir de mousses terrestres de l'espèce :



Pleurozium schreberi, *Hylocomium splendens*, *Hypnum cupressiforme* ou *Scleropodium purum*.

⁵ Formation au sein du laboratoire de botanique et de phytogéographie de l'université de Caen par le Dr. Sandrine Deperrier.

Homalothecium sericeum et *Scleropodium purum* ; étape nécessaire pour réduire l'incertitude sur la détermination.

Treize stations, localisées au nord de l'usine Cogéma-La Hague (de Hameau Sanson - à l'Ouest - à l'Epine Due - à l'Est -), ont été étudiées. Pour trois d'entre elles, situées sous les vents dominants et par conséquent susceptibles d'avoir été influencées par les rejets d'effluents gazeux (CRIIRAD, 1995), des mousses ont été collectées en vue de la recherche de ^{129}I par spectrométrie gamma au germanium pur.

IV) Etude de la répartition spatiale de l'iode 129 dans l'environnement proche de l'usine de retraitement de La Hague

IV.1) Matériel et méthodes

Le secteur étudié se situe dans le Nord-Cotentin (département de la Manche), région de La Hague, et correspond à l'environnement proche de l'usine de retraitement des combustibles irradiés.

Dix huit stations de prélèvement (réparties sur quinze secteurs) ont été sélectionnées dans un rayon de 5 km autour de l'usine et une station a été retenue dans la région caennaise (département du Calvados) pour servir de référence. Les mousses ont été prélevées les 6 et 7 avril 1998.

Sur le terrain, les échantillons ont été collectés sur des murs de pierres (exposition essentiellement verticale) à une hauteur moyenne de 1,5 m et sur une superficie de l'ordre de 0,5 m².

Au laboratoire, les mousses ont été stockées (1 semaine maximum) au réfrigérateur à 4°C dans l'obscurité en attente de traitement.

Après avoir été séchée à l'air libre pendant quelques heures et soigneusement brossée, seule la partie aérienne (verte) a été conservée pour analyse. Trié et légèrement tamisé (maille carré 0,5 mm) afin



Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 32

Finally, it was decided to proceed with only one species in order to limit the possible biases. In this context, *Homalothecium sericeum* was preferred to *Scleropodium purum* to study the distribution of iodine 129 because it presents a higher frequency of appearance and a better geographical distribution.

to eliminate to the maximum the undesirable parts (fragments of support, sand grain, etc.), each sample was then dried⁶ at 60°C in a ventilated oven until the achievement of a constant dry weight. At the end of the drying, a quantity of about 8,5 g of dry matter was then conditioned (in the state) in a geometry⁷ of 50cc for analysis.

The measurement of ^{129}I and of other gamma emitting radioelements (^{137}Cs , ^7Be , ^{40}K and ^{210}Pb) was performed by gamma spectrometry on the peaks of emissions reported in table 7.

The analysis chain included a detector (ORTEC) of germanium hyperpur coaxial type N, efficiency 32%, mounted in a vertical cryostat, and the analyzer was a

⁶ consignes de séchage en accord avec la norme NF M 60-780-4.

⁷ référence 9AC-ETL5, distributeur LMRI.

système d'acquisition numérique "DSPEC" (ORTEC).

Concernant les résultats, ils ont été obtenus après 20 heures de comptage (minimum).

Seules les activités supérieures à la limite de détection de la chaîne d'analyse sont exprimées ; dans le cas contraire, la limite de détection précédée du signe "<"

est rapportée. L'activité de chaque radioélément présent dans l'échantillon a été exprimée en becquerel par kilogramme sec (Bq/kg sec), suivi de son incertitude absolue calculée pour un intervalle de confiance de 95%. Toute activité donnée a été rapportée au jour de prélèvement.

Tableau 7: raies et pourcentages d'émissions retenus pour la détermination des radionucléides, présents dans les échantillons, par spectrométrie gamma.

Isotopes	Energie (en kev)	Taux d'émission (%)
⁷ Be	477,6	10,4
⁴⁰ K	1460,8	10,7
²¹⁰ Pb	46,5	4,1
¹²⁹ I	29,4 + 29,8	57
¹³⁷ Cs	661,7	85,2

• **Remarques sur les mesures**

Habituellement, la méthode analytique (mise en œuvre au sein du laboratoire) pour la mesure des échantillons de faibles densités fait appel à une intrusion en gel dans le but d'obtenir une densité finale de 1 puisque les résultats (Bq/kg sec) sont obtenus par comparaison des taux d'émissions avec un étalon liquide de densité 1.

Le peu de quantité disponible et la nécessité de conserver les caractéristiques initiales de chaque échantillon pour le dosage de l'iode stable ont fait que la méthode citée avant n'a pas été employée. Aussi, pour que les résultats restent parfaitement comparables entre eux, la mesure des radioéléments émetteurs gamma a été effectué sur des échantillons de densité proche (densité moyenne de 0,165).

Cependant, cette différence de densité entre étalon et échantillons mesurés conduit vraisemblablement à surestimer les activités obtenues ; surtout dans le cas de l'iode 129 (émetteur gamma de faible énergie).

Pour les résultats d'iode total, l'incertitude associée à la mesure n'a pas été calculée. Il convient de signaler que pour une prise d'essai de 5 g d'échantillon, la sensibilité était de 0,5 mg/kg, et pour une teneur supérieure à 5 mg / kg, la précision était de ± 10% (communication du laboratoire Brest-Océan).



IV.2) Résultats et discussion

• Analyses des données brutes

Dans la région de La Hague, l'iode 129 est fréquemment détecté (15 échantillons sur 19) et les activités mesurées sont comprises entre 10,7 et 99 Bq/kg sec

A titre de comparaison, l'échantillon témoin prélevé dans le Calvados (région caennaise) ne présente pas d'activité significative en iode 129 ($L_d = 9,2$ Bq/kg sec).

Concernant l'environnement de l'usine de retraitement, il est possible de distinguer quatre zones en fonction des activités relevées:

- 1) La première zone, définie par le quart Nord-Est, se caractérise par des activités comprises entre 20 et 50 Bq/kg sec. Sur huit stations étudiées, seule celle située à 5 km à l'Est (Eculleville) ne présente pas de marquage par ^{129}I .
- 2) La deuxième zone, définie par l'axe Sud-Ouest, se distingue par la présence de la valeur maximale : 99 Bq/kg sec mesuré à Calais le Mesnil, station située à environ 1 km de l'usine.
- 3) La troisième zone, définie comme le Sud affranchie de l'axe Sud-Ouest, se caractérise par des activités significatives globalement



inférieures à 20 Bq/kg sec.

Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 34

- 4) La dernière zone, définie par l'axe Nord-Ouest, se singularise par l'absence d'activité significative au droit de chacune des stations étudiées.

Par ailleurs, l'orientation des mousses ne paraît pas avoir de répercussion importante sur les niveaux

d'activités enregistrés si on se réfère aux valeurs obtenues pour les prélèvements doubles⁸ effectués à Hameau Grainval et Omonville la Rogue.

Pour le site de Digulleville, l'état des mousses, très variable d'une station de prélèvement à l'autre (communication de l'équipe de prélèvement), pourraient expliquer en partie les différences relevées.

En plus de ^{129}I , le césium 137 est l'unique radioélément artificiel émetteur gamma à être décelé. Sur les dix-neuf échantillons analysés, seuls quatre (prélevés dans la région de La Hague) présentent un marquage par ce radioélément et l'activité mesurée est alors comprise entre 13 et 27 Bq/kg sec.

A titre de comparaison, l'échantillon témoin prélevé dans le Calvados (région caennaise)

⁸ Prélèvements espacés d'environ 200 m et concernant des expositions différentes.

ne présente pas non plus d'activité significative en césium 137.

- **Comparaison des teneurs à celles obtenues par le passé**

Comme évoquée en introduction, une campagne de mesure similaire avait déjà eu lieu fin 1994 (CRIIRAD, 1995) en collaboration avec l'ACRO.

A cette époque, l'indicateur retenu était *Bryum argenteum* chez lequel ^{129}I (de 5,3 à 103 Bq/kg sec) et ^{137}Cs (de 14,2 à 292 Bq/kg sec) avaient pu être mis en évidence avec une fréquence de détection respectivement de 80% et de 100%.

Trois ans après, on constate que l'iode 129 est toujours décelable à des teneurs qui restent très comparables. En outre, la distribution spatiale des activités apparaît également en bonne cohérence.

En revanche, il en est autrement pour ^{137}Cs puisqu'en avril 1998 il est rarement détecté (4 éch. sur 19) et que les teneurs significatives n'excèdent pas 27 Bq/kg sec soit $1/10^{\text{ème}}$ de la plus forte valeur enregistrée par la CRIIRAD fin 94. Cette baisse notable des teneurs en ^{137}Cs pourrait éventuellement s'expliquer par une réduction des quantités rejetées avec les effluents gazeux ($3,90 \cdot 10^5$ Bq en 1994 contre $6 \cdot 10^4$ Bq en 1997 selon les données COGEMA), mais également à partir des espèces sélectionnées puisqu'il ne s'agit pas des mêmes.

- **Note sur l'origine de l'iode 129 et du césium 137**

Dans la zone littorale étudiée, l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague, avec ses rejets d'effluents radioactifs est la principale source industrielle de radionucléides artificiels.

La frange côtière autour de l'installation peut donc se trouver influencée par les rejets marins et atmosphériques.



De plus, dans le cas du césium 137, il y a lieu de tenir compte des retombées des anciens essais atmosphériques de l'arme atomique et, dans une moindre mesure, de celles de l'accident de Tchernobyl. En effet, ces termes sources ont conduit pour le ^{137}Cs , à la différence de ^{129}I , à un marquage de l'environnement (sur de grandes étendues) parfaitement décelable, même encore aujourd'hui.

Dans le cas d'un transfert de radionucléides du milieu marin au milieu terrestre, il est important de souligner que la "micro-couche" d'eau située à l'interface océan/atmosphère peut être considérée comme un "réservoir" de radionucléides, quelles que soient leurs origines, pouvant alimenter des transferts via les aérosols et embruns marins (Fraizier *et al.*, 1982). L'accroissement de la radioactivité de la frange côtière en relation avec le marquage industriel du milieu marin contigu a déjà été démontré pour le césium 137 (et d'autres radionucléides).

Pour l'iode 129 rejeté avec les effluents liquides en mer, si aucune étude (en notre possession) ne confirme le transfert de ce radioélément suivant le processus évoqué précédemment, son recyclage dans la biosphère et finalement son retour sur le milieu terrestre (par transfert depuis l'eau de mer via l'atmosphère) peut être raisonnablement avancé à partir des informations tirées de la littérature sur l'iode stable (voir Ch. I.5).

Dans ce cas de figure, deux facteurs devraient être prépondérants. D'une part, la dilution isotopique puisque l'iode 129 rejeté avec les effluents liquides se trouve mélangé à de l'iode 127 présent à une concentration importante ($60 \mu\text{g.L}^{-1}$). D'autre part, l'évolution des formes chimiques de l'iode 129 puisque Miyake/Tsunogai (1963) et Whitehead (1984) ne partagent pas la même opinion sur la forme chimique de l'iode 127 préférentiellement transférée à l'atmosphère par volatilisation.

Finalement, les radionucléides mis en jeu sont susceptibles de marquer l'environnement étudié par l'intervention de différentes voies de transfert avec recyclage éventuel, ce qui complique l'analyse de leur origine (effluent gazeux et /ou liquide).

Cependant, pour l'iode 129 (d'origine industrielle ; usine de retraitement), si l'hypothèse d'un marquage partiel des mousses terrestres par des radionucléides provenant des rejets d'effluents liquides en mer ne peut être écartée en l'absence de données, en revanche, les rejets d'effluents gazeux resteraient le terme source privilégié d'après l'étude réalisée par la CRIIRAD (1995). Ce qui semblerait être confirmé par les mesures faites par le SPR Cogéma-La Hague sur l'herbe prélevée en deux points (l'un au nord-est, l'autre au sud-ouest) situés à 1 km de l'usine et sous les vents dominants (voir figure 6). En effet, on constate qu'à partir de 1996 les teneurs mesurées dans l'herbe diminuent tout comme les quantités rejetées avec les effluents gazeux alors que celles évacuées en mer avec les effluents liquides restent sensiblement les mêmes pour la période concernée.

• **Note sur la distribution spatiale de ^{129}I et sur quelques facteurs influents**

Dans le contexte d'un marquage par des rejets d'effluents gazeux, outre les caractéristiques physiques



Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 36

de l'élément et les qualités du rejet, les conditions climatiques vont jouer un rôle déterminant dans la distribution spatiale de l'élément.

Sur le plateau de La Hague, zone étudiée, le climat océanique se caractérise pour les deux dernières années⁹ par des précipitations plus fréquentes qu'abondantes (moyenne journalière de 2.3 mm) et des vents (moyens et forts) soufflant presque constamment. Concernant la rose des vents (de 1992 à 1997), trois zones dominantes sont constatées par tous temps alors que par temps de pluie, une seule direction domine : du sud-ouest vers le nord-est.

Pour l'iode 129, la distribution spatiale des activités présente une bonne concordance avec la rose des vents. Les activités les plus importantes se situent dans la zone des vents dominants (au nord-est de l'usine), et l'axe nord-ouest qui se singularisait par l'absence d'activités significatives correspond à la direction où la fréquence des vents est la plus faible. Cette observation principale confirme bien l'origine dominante de l'iode 129 mesuré comme le produit des rejets d'effluents gazeux de l'usine de retraitement. Cependant, quelques "irrégularités" doivent être soulignées. Il s'agit de la variation des teneurs mesurées à Digulleville, mais aussi et surtout de la faible décroissance des niveaux

⁹ Du 01/01/96 au 31/12/97.

Nota : Pour le césium 137 d'origine multiple, l'absence d'un marquage significatif pour les stations les plus proches de l'usine COGEMA La Hague et sous les vents dominants ne permet pas de justifier d'une contribution des rejets d'effluents gazeux.

de ^{129}I en fonction de l'éloignement à l'émissaire (essentiellement pour l'axe nord-est).

Ces "anomalies", qui peuvent traduire des différences de sorption en fonction de paramètres physiques comme la topographie ou biologique comme l'état des mousses (et leur âge), soulignent la nécessité de prendre en compte de multiples facteurs.

1. D'abord, l'absence de pseudo régime permanent des conditions météorologiques et donc l'absence de trajectoires "résiduelles" que la rose des vents pourrait traduire de façon plus claire.
2. Puis, la longue demi-vie de l'iode ^{129}I qui nécessite de prendre en compte les phénomènes éventuels d'intégrations. Or, à cet égard, il n'a pas été possible de dater les mousses prélevées.
3. Mais encore, les précipitations qui sont, dans la région de La Hague, plus fréquentes qu'abondantes. Des études récentes (Caput *et al.*, 1992 ; Fournier-Bidoz V., 1992) montrent à quel point les pluies sont susceptibles, par lavage, de modifier la distribution de l'iode élémentaire à l'état de vapeur (figure 5).
4. En outre, il y a également nécessité de s'interroger sur un phénomène propre au cap de La Hague, à savoir la grande fréquence des brouillards

persistants qui n'a toujours pas reçu un intérêt particulier dans le cadre des études de dispersion des radioéléments et autres polluants. Guénot *et al.* (1981) ont montré qu'en présence d'air humide, la vitesse de dépôt de I_2 est multipliée par 10 comparativement à celle obtenue en présence d'air sec. Ces mêmes auteurs ont également avancés l'existence d'un mécanisme d'adsorption dépendant de l'humidité dans l'air qui, lorsque celle-ci est élevée, transforme la surface foliaire en « piège quasi parfait ».

5. Et finalement, les formes chimiques de l'iode présentes dans l'atmosphère et leurs évolutions dans le temps (figure 4) qui vont jouer un rôle sur le comportement du radionucléide. A titre d'exemple, la vitesse de dépôt de CH_3I est plus faible que celle de I_2 , comme cela a été démontré pour les grains riz (Yasuyuki *et al.*, 1996) mais également pour quelques végétaux comme l'herbe (Atkins *et al.*, 1967).

V) Conclusion

L'étude préliminaire de la répartition de l'iode ^{129}I (radioélément principalement d'origine industrielle) a permis de souligner les limites d'utilisation d'une mousse terrestre du genre d'*Homalotecium sericeum* comme bio-indicateur. Bien que celle-ci paraissait adaptée à une telle étude, les quantités disponibles sont apparues insuffisantes pour obtenir une précision satisfaisante sur les mesures par spectrométrie gamma. De plus, certaines difficultés techniques liées au traitement de l'échantillon ont rendu les résultats des

mesures d'iode total très hétérogènes et donc inexploitable. De ce fait, l'interprétation s'est trouvée limitée puisque le rapport $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ n'a pu être utilisé. De plus, l'absence d'information sur l'âge et les cinétiques de sorption et désorption de l'iode ^{129}I par *Homalotecium sericeum* constitue un facteur limitant dans le cadre de l'utilisation de ce bryophyte pour traduire la qualité



radiologique de l'air sur un laps de temps donné¹⁰.

Cependant, cette étude préliminaire a tout de même permis de donner une répartition spatiale de ce radioélément autour de l'usine de retraitement de La Hague (terme source) qui souligne l'existence de quatre zones géographiques en fonction des activités relevées. Les niveaux sont dans l'ensemble inférieurs à 99 Bq/kg sec ; valeur maximale décelée au sud-ouest de l'usine.

Si l'existence d'une bonne corrélation entre la rose des vents et la répartition spatiale des activités conforte l'idée d'une contribution majoritaire des rejets d'effluents gazeux, néanmoins, il n'est pas possible, à partir des données acquises, de préciser l'importance prise par l'iode 129 issu des rejets marins. Alors que la bibliographie montre, d'une part, que pour d'autres radionucléides tels que le césium 137 il est nécessaire de tenir compte du transfert du milieu marin vers le milieu terrestre, et que d'autre part, pour l'iode stable - ¹²⁷I- (analogue chimique) plusieurs voies de transferts avec recyclage doivent être considérées.

En outre, la présence d'anomalies dans la distribution spatiale par rapport à la rose des vents, principalement la faible décroissance des niveaux en fonction de l'éloignement, soulignent, en relation avec la bibliographie, que plusieurs facteurs sont à prendre en compte : la topographie, la fréquence des pluies et brouillards persistants, les formes chimiques de l'iode dans l'atmosphère (et leur évolution), l'absence de pseudo-régime permanent des conditions météorologiques... Tous ces facteurs vont modifier la

distribution spatiale de l'iode 129 libéré avec les effluents gazeux et compliquent l'analyse que l'on peut faire de la répartition spatiale de cet élément.

Dans un avenir proche, il est souhaitable d'améliorer la connaissance que l'on peut avoir des transferts (et quantité) d'iode 129 du milieu marin au milieu terrestre, mais également, celle que l'on peut avoir des facteurs pouvant modifier la distribution spatiale de ce radionucléide ; surtout dans le cas de La Hague où les conditions environnementales sont particulières.

De plus, l'endroit où peut être mesurée la plus forte activité en ¹²⁹I (Calais le Mesnil dans le cadre de cette étude) et son évolution géographique en fonction des conditions météorologiques devront revoir un intérêt particulier.

Par ailleurs, si l'utilisation des mousses terrestres comme bio-indicateur peut paraître parfois délicate, ces bryophytes restent tout de même un indicateur de choix, couramment utilisé, pour renseigner sur la qualité de l'air. Ce type de mesure est nécessaire pour améliorer la connaissance théorique de l'impact des rejets d'effluents radioactifs. D'autant que l'iode 129 est aujourd'hui mesuré (dans La Hague) à des niveaux significatifs dans plusieurs compartiments et qu'il contribue significativement à la dose imputable aux rejets atmosphériques : environ 45% de l'exposition globale du groupe « agriculteur » à Pont Durand (nord-ouest) en 1996 (rapport du groupe de travail n°4 du Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999). Rappelons, que les modèles théoriques

¹⁰ Beaugelin-Seiller (1994) a démontré, à partir d'études de décontamination réalisées à la suite de phases d'accumulation, que les bryophytes aquatiques n'élimineraient pas l'iode.
Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 38



utilisés pour le calcul des CTA (coefficient de transfert atmosphérique) sont très approximatifs et les validations expérimentales difficiles. Par exemple, à La Hague, les conditions de rejets (hauteur de cheminée) et météorologiques font que l'on est souvent en dehors du domaine de validité du modèle de Doury. On comprend alors tout l'intérêt des mesures dans l'environnement.

Aussi, il serait souhaitable de mettre en place pour quelques stations, choisies en fonctions des résultats de

cette étude, un suivi régulier (éventuellement d'un autre bio-indicateur) pour apprécier l'évolution des teneurs dans le temps et noter les possibilités de corrélations avec des paramètres météorologiques. Dans ce contexte, *Homalotecium sericeum* devra être remplacé par un autre bio-indicateur offrant une meilleure abondance sur site et la possibilité de mesurer l'iode stable.

Remerciements

Nous remercions le Dr Deperier et le Pr. Lecointe¹¹ du laboratoire de Botanique et de Phytogéographie de l'Université de Caen, qui ont bien voulu typer les mousses terrestres et former l'équipe à la reconnaissance phylogénétique de *Homalotecium sericeum*, ainsi que le Professeur J. Touffet du laboratoire de botanique de l'université de Rennes, le Professeur Bardat du Muséum d'Histoire Naturelle de Paris et M. R.B. Pierrot auteur de "Les Bryophytes du centre-ouest : Classification, Détermination." pour leurs précieux conseils. Nous remercions également Pierre Barbey (Maître de conférence en biochimie et Conseiller Scientifique de l'ACRO) et David Boilley (Maître de conférence en physique nucléaire et Président de l'ACRO) pour leur collaboration à la réalisation et la vérification de cette étude.

VI) Bibliographie

- AEN, 1980. *Importance radiologique et gestion des radionucléides (tritium, carbone 14, krypton 85 et iode 129) produits au cours du cycle du combustible nucléaire*. Rapport de l'OCDE.
- Ancellin J., Guéguénat P. et Germain P., 1979. *Radioécologie marine. Etude du devenir des radionucléides rejetés en milieu marin et application à la radioprotection*. 256 p. Paris : Eyrolles.
- Bachhuber H. et Bunzl K., 1992. *Background Levels of Atmospheric Deposition to Ground and Temporal Variation of ¹²⁹I, ¹²⁷I, ¹³⁷Cs and ⁷Be in a Rural Area of Germany*. J. Environ.
- Beaugelin - Seiller K., 1994. *Caractérisation de mousses dulçaquicoles comme indicateurs de contamination radioactive*. Thèse, Université Montpellier II, 244 p.
- Brauer S.P. et Strebin R.S. : 1982 : Environmental Concentration and Migration of ¹²⁹I. In Environmental Migration of long-lived radionuclides : AIEA proceedings AIEA-SM-257/43, 465-480.
- Caput C., Camus H., Gauthier D. et Belot Y., juin 1992. *Etude expérimentale du lavage de l'iode par la pluie*. Radioprotection, vol 28, n°1, pp. 15-22.
- Chant L.A., 1996. *¹²⁹I and ³⁶Cl Concentration in lichens Collected in 1990 from Three Regions around Chernobyl*. Appl. Radiat. Isot., Vol. 47, No. 9/10, pp. 933-937.
- CRII-RAD, 1995. *Contrôle radiologiques dans l'environnement des installations nucléaires de la Hague*.
- CSPI, Mai 1996. *L'iode, son origine, ses rejets, son contrôle et son impact dans l'environnement*.
- Fraizier A. et Baron Y., 1982. *Radioactivité d'un secteur littoral de la manche. Données nouvelles sur les sources et transferts au continent par aérosols et embruns marins*. IPSN. Rapport CEA-R-5193.
- Edwards R.R. 1962 : ¹²⁹I : Its Occurrence in Nature and its utility as a Tracer. *Science* 137, 851-853.
- Fraizier A. Masson M. et Guary J.C., 1977. *Recherches préliminaires sur le rôle des aérosols dans le transfert de certains radioéléments du milieu marin au milieu terrestre*. J. Rech. Atmos., 11, n°1, pp. 49-60.
- Fournier-Bidoz V., 1992. *Contribution à l'étude du lavage de l'iode moléculaire gazeux par les pluies naturelles*. IPSN. Rapport CEA-R-5604.
- Fuge R., 1989. *The role of volatility in the distribution of iodine in the secondary environment*. Applied Geochemistry, 5, pp. 357-360.
- Guenot J., Caput C., Belot Y., Bourdeau F. et Angeletti L., 1981. *Dépôt de l'iode sur les végétaux : influence de l'ouverture stomatique et de l'humidité relative*. Congrès de radioprotection sur l'impact radiologique des centrales et autres installations nucléaires sur l'homme et son environnement. Lausanne 30 sept. - 2 oct. 1981.



Une pensée particulière à notre ami, Alain Lecointe, Lichenologue passionné dont la compétence et le soutien amical et associatif vont nous manquer.
Bull. Obs. Myco. n° 18 p. 39

- Hirofumi Tsukada, Junichiro Ishida et Osamu Narita, 1990. *Particle-size distributions of atmospheric ^{129}I and ^{127}I aerosols*. J. Atmospheric Environment, 25A, n°5/6, pp. 905-908.
- Jahns H.M., 1989. *Guide des fougères, mousses et lichens d'Europe*. Ed Delachaux et Niestlé.
- OPRI (Office de Protection contre les rayonnements ionisants), 1997. *Rapport d'activité - année 1996* - 363 p.
- Lebourgeois V. 1997. *Le comportement de l'iode dans les organismes marins*. Mémoire de maîtrise, Université de Caen, 20 p.
- Miyake Y. et Tsunogai S. : Evaporation of Iodine from the Ocean. *J. Geophys. Res* 68, p 3989 - 3993.
- Muramatsu Y. et Ohmomo Y 1986 : Iodine 129 and Iodine 127 in Environmental Samples collected from Tokaimura Ibaraki, Japan. *Sc. Total Env.*, 48, 33-43.
- Papastefanou et al., 1989. *Lichens and mosses : Biological Monitors of Radioactive Fallout from the Chernobyl Reactor Accident*. J. Environ. Radioactivity, 9, pp. 199-207.
- Radioactivity, vol.16, pp. 77-89.
- Pierrot R.B., 1982. *Les Bryophytes du centre-ouest : Classification, Détermination*. Bulletin de la société botanique du centre-ouest.
- Saas A. et Graubry A., 1977. *Cycle de l'iode dans l'environnement*. In : Proceeding of a meeting on iodine 129, Paris, 13-16 juin 1977. pp. 15-31.
- Saas A., 1981. *Géochimie de l'iode dans les principaux types de sols français*. C.R. Séances Acad. Agric. Fr., 21 janvier 1981. pp. 161-175.
- Sawidis T. et al., 1988. *Uptake of radionuclides by plants after the Chernobyl Accident*. Environmental Pollution, 50, pp. 317-324
- Stephenson M. et Motycka M, 1995. *Volatility of ^{125}I in Fresh Water*. J. Environ. Radioactivity. Vol. 28, n°3, pp. 295-311.
- Stewart S.P. et Wilkin B.T. 1985: *Areal Distribution of ^{129}I in West Cumbrian Soils*. *J. Environ. Radioactivity*. 2., 175-182.
- Tsunugai S. et Sase T. 1969 : *Formation of Iodide-Iodine in the Ocean*. *Deep Sea Res.* 16. 489 - 496.
- Whitehead, D.C. 1984 : *the Distribution and Transformation of Iodine in the Environment*. *Environ. Int.* 10, 321 - 339.
- Yasuyuki Muramatsu, Shiegeo Uchida, Misako Sumiya et Yoichiro Ohmomo, 1996. *Deposition velocity of gaseous organic iodine from the atmosphere to rice plants*. Health Physics Society, pp. 757-761.

