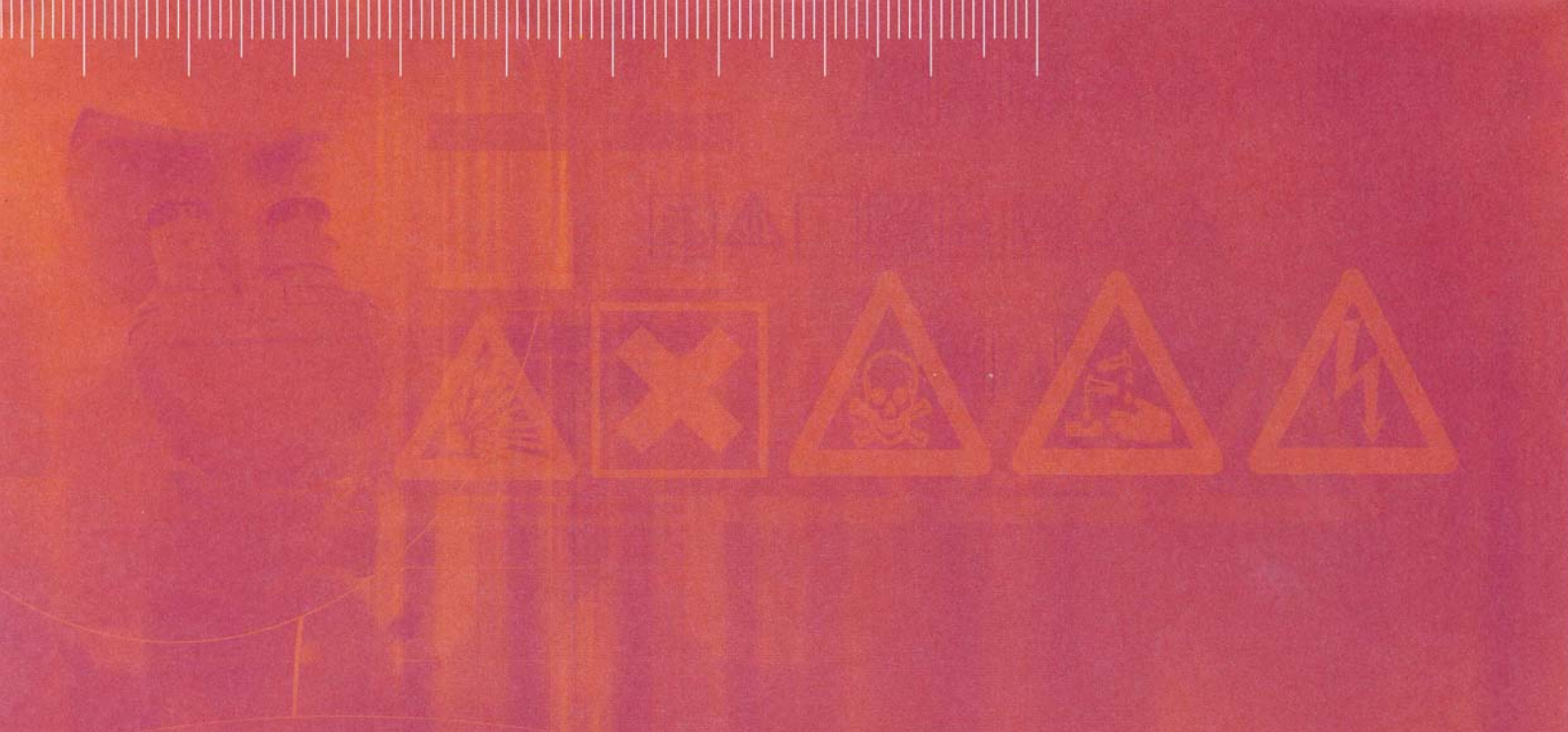




RAPPORT FINAL BCRD03-DRC06 01/12/2008
N° DRC-08-57041-14967A

Améliorer les méthodes d'estimation
prospective de l'exposition aux polluants des
populations autour d'une Installation
Classée pour la Protection de
l'Environnement

INERIS

maîtriser le risque |
pour un développement durable |

Améliorer les méthodes d'estimation prospective de l'exposition aux polluants des populations autour d'une Installation Classée pour la Protection de l'Environnement

MINISTERE DE L'ECOLOGIE, DE L'ENERGIE, DU DEVELOPPEMENT
DURABLE ET DE L'AMENAGEMENT DU TERRITOIRE

Autorisation de programme 2003 – Rapport final

Liste des personnes ayant participé à l'étude :

Giovanni CARDENAS : ingénieur du pôle Modélisation environnementale et décision, unité Modélisation atmosphérique et cartographie environnementale

Karine TACK : ingénieure du pôle Caractérisation de l'environnement, unité Innovation pour la mesure

Guillemette JANTOLEK, technicienne du pôle Risque et technologies durables, unité Comportements des contaminants dans les sols et les matériaux

PRÉAMBULE

Le présent rapport a été établi sur la base des informations fournies à l'INERIS, des données (scientifiques ou techniques) disponibles et objectives et de la réglementation en vigueur.

La responsabilité de l'INERIS ne pourra être engagée si les informations qui lui ont été communiquées sont incomplètes ou erronées.

Les avis, recommandations, préconisations ou équivalent qui seraient portés par l'INERIS dans le cadre des prestations qui lui sont confiées, peuvent aider à la prise de décision. Etant donné la mission qui incombe à l'INERIS de par son décret de création, l'INERIS n'intervient pas dans la prise de décision proprement dite. La responsabilité de l'INERIS ne peut donc se substituer à celle du décideur.

Le destinataire utilisera les résultats inclus dans le présent rapport intégralement ou sinon de manière objective. Son utilisation sous forme d'extraits ou de notes de synthèse sera faite sous la seule et entière responsabilité du destinataire. Il en est de même pour toute modification qui y serait apportée.

L'INERIS dégage toute responsabilité pour chaque utilisation du rapport en dehors de la destination de la prestation.

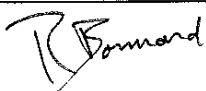
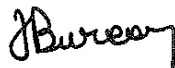
	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	R. BONNARD	C. MANDIN	J. BUREAU
Qualité	Ingénieure à l'unité Impact Sanitaire et Exposition	Ingénieure à l'unité Impact Sanitaire et Exposition	Responsable du pôle Risque et technologies durables
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

SECTION A : SYNTHÈSE DE LA RECHERCHE	6
1 INTRODUCTION GÉNÉRALE ET CONTEXTE.....	6
2 PROBLÉMATIQUE ET QUESTIONNEMENT SCIENTIFIQUE DE LA RECHERCHE	7
3 METHODOLOGIES EMPRUNTÉES.....	8
3.1 Choix du site	9
3.2 Données de mesure provenant du site.....	11
3.2.1 Flux canalisés émis par l'usine	11
3.2.2 Concentrations dans l'air	11
3.2.3 Dépôts au sol.....	11
3.2.4 Concentrations dans les végétaux.....	11
3.2.5 Concentrations dans les sols	11
3.2.6 Données de plombémie	12
3.3 Modèles utilisés.....	12
3.4 Définition des données d'entrée de la modélisation	14
3.4.1 Attribution de valeurs déterministes et de distributions aux paramètres d'entrée des modèles pour l'étude du cas type	14
3.4.1.1 Définition du terme source d'exposition.....	14
3.4.1.2 Définition des autres paramètres d'entrée.....	15
3.4.2 Définition des données d'entrée pour la comparaison mesures/modèles.....	15
4 RESULTATS ET DISCUSSION.....	18
4.1 Comparaison des méthodes d'analyse par ICP/OES et par XRF	18
4.2 Comparaison des concentrations atmosphériques et des dépôts aux sols mesurés avec les concentrations atmosphériques et les dépôts aux sols modélisés	19
4.3 Comparaison des résultats des chaînes de modélisation sur le cas type ...	23
4.4 Comparaison des concentrations et des niveaux d'exposition mesurés et modélisés	28
4.4.1 Résultats obtenus avec le modèle A.....	28
4.4.2 Résultats obtenus avec le modèle B.....	30
4.4.2.1 Concentrations dans les végétaux	30

4.4.2.2	Plombémie.....	32
4.4.3	Comparaison des résultats fournis par les deux modèles.....	33
5	CONCLUSION ET PERSPECTIVES	34
6	COLLABORATIONS	37
7	REFERENCES CITEES	38
SECTION B : PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES		43
	Comparison of the predictions of two models with dose measurements in a case of children exposed to the emissions of a lead smelter	45
	Comparison of lead concentration in surface soil by Inducted Coupled Plasma/Optical Emission Spectrometry and X-Ray Fluorescence	71
	LISTE DES ANNEXES	77

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Doses d'exposition pour la tranche des 1-3 ans	23
Tableau 2 : Plombémie des enfants de 1-2 ans ($\mu\text{g/l}$)	24
Tableau 3 : Pourcentage de contribution des paramètres d'entrée à la variance.....	27

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Photographie aérienne de Bourg-Fidèle (source : IGN)	10
Figure 2 : Comparaison des concentrations atmosphériques mesurées et des concentrations atmosphériques modélisées.....	19
Figure 3 : Rapport entre les dépôts mesurés en novembre 2005 dans les différentes jauges et les dépôts estimés par modélisation aux emplacements correspondants.....	20
Figure 4 : Doses d'exposition liées aux différentes voies selon les approches déterministe et probabiliste.....	25
Figure 5 : Doses d'exposition liées aux différents milieux environnementaux selon les approches déterministe et probabiliste.....	26
Figure 6 : Comparaison entre les concentrations mesurées et les concentrations modélisées (a : concentrations modélisées par rapport aux concentrations mesurées - les barres d'erreurs représentent l'intervalle de variation à 90% de la concentration estimée, b : rapport des concentrations mesurées sur les concentrations médianes estimées par le modèle)	31

SECTION A : SYNTHÈSE DE LA RECHERCHE

1 INTRODUCTION GÉNÉRALE ET CONTEXTE

En France, les études d'impact réalisées dans le cadre des procédures d'autorisation des Installations Classées pour la Protection de l'Environnement (ICPE) doivent prendre en compte l'impact sur la santé des populations (Loi sur l'Air de 1996 et son article 19, circulaire de la DPPR du 19 juin 2000). La démarche d'évaluation des risques sanitaires (ERS) est la méthode préconisée pour caractériser le risque encouru par une population vivant dans la zone d'influence d'une ICPE. Dans ces études prospectives, l'étape d'évaluation des expositions repose fréquemment, hors situation de pollution avérée, sur une approche de modélisation, car ce sont les risques futurs qui sont évalués.

Or, l'analyse des dossiers d'évaluation de risques dans le cadre des études d'impact laisse apparaître le caractère peu précis des estimations réalisées jusqu'alors (avec en particulier l'utilisation de valeurs de paramètres dont la représentativité n'est pas connue par rapport aux conditions environnementales et aux populations cibles étudiées). Le recours à des hypothèses tendant à majorer les expositions est fréquent, sans que l'on sache finalement si la situation scénarisée est plausible. Des modèles variés sont également utilisés, et il n'est pas rare de constater des résultats incohérents entre différentes études, voire des résultats très différents pour un même cas d'étude. Face à ce constat, il est indispensable d'améliorer les pratiques d'estimation de l'exposition par modélisation. Cette amélioration peut revêtir deux aspects :

- ♦ l'évaluation des modèles utilisés d'une part,
- ♦ le renforcement de la cohérence, de la transparence et de la caractérisation des résultats obtenus au sein de chaque étude d'autre part.

Même si les guides d'évaluation des risques pour les sols pollués et les ICPE présentent « l'évaluation de risques comme une démarche visant à **structurer les éléments de connaissances**, tout en les **assortissant des incertitudes correspondantes** », l'étape d'évaluation des incertitudes est encore souvent absente des études, ou se limite à une approche purement qualitative.

Selon les hypothèses formulées, des niveaux d'exposition très différents peuvent être calculés. Il est donc indispensable de documenter ces hypothèses pour savoir à quoi correspond le résultat obtenu (approche moyenne, « raisonnablement » ou très majorante ? raisonnement basé sur des hypothèses fortes ou non ?). Pourtant, même en précisant et justifiant les choix effectués, une estimation de l'exposition réalisée de manière déterministe ne permet pas de connaître la marge de sécurité attachée à l'estimation obtenue. Ceci a motivé le développement de travaux autour de l'évaluation des incertitudes (premier atelier organisé par l'US EPA en 1996 et rédaction d'un premier guide méthodologique un an plus tard (Oberg *et al.*, 2005)) et la réalisation d'évaluations probabilistes des risques.

L'évaluation probabiliste des risques a été surtout développée aux Etats-Unis (US EPA, 2001). En Europe, son utilisation est encore limitée, même si des recommandations en ce sens ont été faites par le Comité Scientifique de Toxicité,

d'Ecotoxicité et de l'Environnement (CSTEE, 2000 et 2001) et si ces dernières années, les exemples d'applications publiés sont plus nombreux (Schwartz, 2000 ; Schumacher *et al.*, 2001 ; Sander *et al.*, 2006, Morra *et al.*, 2006).

Bien que la France soit un des rares pays qui ait systématiquement recours à l'ERS dans le cadre de la procédure d'autorisation d'exploiter des installations industrielles, aucune évaluation des risques sanitaires réalisée dans le cadre des études d'impact pour les ICPE ne semble avoir été conduite selon une approche probabiliste. L'étude sur le risque de leucémies attribuables aux installations nucléaires du Nord-Cotentin (Groupe Radioécologique du Nord-Cotentin, 2002) semble être la seule évaluation probabiliste des risques réalisée en France. Les connaissances sur l'incertitude des niveaux d'exposition et de risques estimés dans les études d'impact des ICPE (où les niveaux d'exposition des cibles sont estimés à partir du ou des termes sources) sont donc particulièrement limitées.

2 PROBLEMATIQUE ET QUESTIONNEMENT SCIENTIFIQUE DE LA RECHERCHE

Ce programme vise principalement à acquérir des éléments d'information sur la qualité (précision et justesse) des estimations de l'exposition par modélisation.

La majorité des ERS réalisées actuellement dans le cadre des dossiers d'études d'impact concerne les risques liés aux émissions atmosphériques des installations industrielles. L'exercice d'estimation des expositions met alors en jeu plusieurs modèles utilisés en série (les résultats des premiers servent de données d'entrée aux suivants) : modèle de dispersion atmosphérique pour le calcul des concentrations atmosphériques et des dépôts au sol, modèle multimédia pour le calcul des concentrations dans les différents milieux environnementaux et le calcul des doses d'exposition externe, et éventuellement, modèle biocinétique ou pharmacocinétique pour le calcul des doses internes. Par ailleurs, pour chaque maille de cette chaîne de modélisation, différents modèles coexistent.

L'objectif principal du programme est donc d'apporter des éléments de réponse aux questions suivantes :

- quelle est l'incertitude entourant le niveau d'exposition obtenu à l'aide de la chaîne de modélisation utilisée ?
- compte-tenu de l'incertitude entourant les résultats des différentes chaînes de modélisation, ces résultats sont-ils comparables ou non ?
- les résultats fournis par ces chaînes de modélisation sont-ils cohérents avec les résultats des mesures ? sinon, d'où viennent les sources de divergence ?

Par le biais de ce programme, il sera possible également :

- de mettre en évidence de règles de bonnes pratiques pour la conduite d'évaluations de risques prospectives, cohérentes et transparentes,
- d'acquérir des données complémentaires sur les transferts entre milieux.

3 METHODOLOGIES EMPRUNTEES

Pour mener à bien ce travail, l'exemple des expositions au plomb a été retenu. En effet, il existe des outils de modélisation, qui permettent d'estimer la plombémie (concentration de plomb dans le sang), d'où potentiellement, la possibilité pour le plomb de confronter les résultats des modèles aux résultats de mesures à deux niveaux :

- celui des compartiments environnementaux (confrontation des résultats des modèles de transfert aux mesures dans l'environnement),
- celui de la dose reçue (confrontation des résultats des modèles de doses internes aux mesures de plombémie).

En pratique, ce travail de confrontation nécessite de disposer de données concomitantes (dans le temps et dans l'espace) et en nombre suffisant concernant les sources d'émissions, l'environnement (concentrations dans l'air, le sol, les matrices biologiques : fruits, légumes, lait, viande,...), les conditions d'exposition (conditions de vie des individus exposés, régime alimentaire, comportement...) et les bioindicateurs de l'exposition (ici la plombémie).

Compte-tenu des situations souvent tendues autour des sites émetteurs de plomb, du caractère invasif des mesures de plombémie, et de la confidentialité attachée aux données sanitaires, le recueil des données nécessaires est souvent difficile. Par ailleurs, les sites ayant fait l'objet de campagnes de dépistage de plombémie sont des sites où la contamination par le plomb est avérée, où les émissions ont eu lieu pendant de nombreuses années et où les sols ont souvent été pollués par plusieurs sources. Dans ce contexte, estimer de manière rétrospective la pollution des sols et des autres compartiments d'exposition (aliments produits autour du site, eau destinée à la consommation, poussières intérieures) à partir des seules données d'émissions, de manière analogue à ce qui est pratiquée dans le cadre d'un dossier d'étude d'impact, n'est pas possible, car dans le meilleur des cas, ces émissions n'ont été caractérisées de manière suffisamment précise que sur les dernières années.

Par conséquent, il est apparu plus opportun, pour mener cette étude sur la qualité des estimations de l'exposition par modélisation, de travailler à partir de deux approches :

- ♦ une première approche où les résultats obtenus grâce à plusieurs chaînes de modélisation, permettant d'estimer les niveaux de doses internes à partir des émissions à la cheminée, sont analysés pour un cas type. Les estimations déterministes y sont comparées aux distributions de résultats obtenus à partir de simulations Monte-Carlo. Le cas type, est rendu réaliste en s'appuyant sur les données issues d'un site existant. Il est représentatif des situations classiquement étudiées dans les ERS pour les installations nouvelles, où l'exposition et le risque attribuables à l'installation sont estimés, en l'absence d'une contamination préalable des sols (le bruit de fond géochimique étant lui pris en compte pour le calcul de la plombémie). Les voies d'exposition considérées sont, en plus de l'inhalation, l'ensemble des voies d'ingestion (ingestion de sol, d'eau, d'aliments d'origine végétale et animale) ;
- ♦ une seconde approche où les concentrations dans l'environnement et les niveaux d'exposition mesurés dans la population autour d'un site pollué sont comparés aux concentrations environnementales et aux niveaux de plombémie

estimés à partir des données d'émission dans l'air et de concentrations dans les sols collectées sur ce site. Les voies d'exposition prises en compte sont l'inhalation, l'ingestion de sol, plus les voies d'exposition identifiées par enquête auprès des individus dont la plombémie a été mesurée, à savoir l'ingestion de fruits et/ou de légumes et l'ingestion d'eau du robinet selon les cas.

3.1 CHOIX DU SITE

Une étude préliminaire réalisée en 2002 dans le cadre d'une mission professionnelle du mastère de l'ISIGE (Institut Supérieur d'Ingénierie et de Gestion de l'Environnement) a permis de recenser les sites industriels émetteurs de plomb les mieux renseignés.

Le site de Métal-Blanc, entreprise de seconde fusion de plomb, installé dans le village de Bourg-Fidèle (Ardennes) a été retenu, car il cumulait plusieurs avantages (cf. photo aérienne ci-dessous). Il s'agit d'un site :

- toujours en activité. Or, il apparaît que les dépôts atmosphériques directs jouent un rôle important dans la contamination des végétaux d'après diverses évaluations de risques et mesures réalisées sur site (Groupe Chimique Nord-Cotentin, 2002, INERIS, 2003, DDASS des Ardennes et DRASS de Lorraine : rapports sur les enquêtes de plombémie menées en 1998 et 2002 à Bourg-Fidèle),
- où la problématique des émissions diffuses est considérée « maîtrisée » par la DRIRE,
- autour duquel il n'existe actuellement aucune autre source industrielle d'émissions atmosphériques de plomb,
- localisé dans une commune rurale où l'on recense des jardins potagers, des pâturages et des élevages bovins,
- ayant fait l'objet de nombreuses investigations et étant toujours soumis à une surveillance environnementale,
- où la population infantile a fait l'objet de plusieurs dépistages du saturnisme.

Malgré ces atouts, plusieurs difficultés ont limité les possibilités d'analyse. Ainsi, en l'absence de mandat issu de la DRIRE il n'a pas été possible de réaliser certaines investigations sur le site industriel et d'avoir accès à certaines données.

Compte-tenu de la confidentialité entourant les résultats des campagnes de dépistage de plombémie, il n'a pas été possible non plus de localiser précisément les lieux de vie des enfants ayant fait l'objet d'un dépistage de la plombémie et donc de mener des investigations dans l'environnement spécifique de chaque enfant (comme des mesures de plomb dans les sols du jardin entourant l'habitation de l'enfant, dans les fruits et légumes autoproduits par sa famille ou dans les poussières intérieures des lieux qu'il fréquente). Or, les concentrations de plomb dans les sols des différentes parcelles cadastrales de la commune peuvent être relativement hétérogènes, du fait de pratiques anciennes ayant consisté à amender certains jardins avec des sables de fonderie. Les informations sur la localisation des enfants dépistés sont limitées à une estimation de la distance de

leur lieu de vie par rapport à l'usine (à 50 mètres près) et à un classement selon trois secteurs angulaires, d'où des possibilités multiples de localisation pour chaque enfant avec des conditions d'exposition à la contamination par le plomb potentiellement différentes.

Pour remédier à ce problème, il a été envisagé de participer à une campagne de dépistage de plombémie programmé par les services sanitaires autour d'un site pollué par du plomb, afin de recueillir l'ensemble des informations nécessaires sur les habitudes de vie des enfants et mener des investigations dans les milieux d'exposition de manière concomitante à l'acquisition des données de plombémie. Mais, le bureau des sols du Ministère chargé de l'environnement n'a pas souhaité voir ce programme de recherche associé à ce type d'investigations.

Remarque : Afin qu'il reste réaliste, le cas type utilisé pour analyser les différentes chaînes de modélisation a aussi été défini à partir de données issues du site Bourg-Fidèle (cf. section 3.4).



Figure 1 : Photographie aérienne de Bourg-Fidèle (source : IGN)

3.2 DONNEES DE MESURE PROVENANT DU SITE

3.2.1 FLUX CANALISES EMIS PAR L'USINE

L'usine Métal-Blanc comporte 4 cheminées faisant l'objet d'un contrôle à l'émission mensuel. Grâce aux durées mensuelles de fonctionnement des installations correspondantes, les flux de plomb émis par ces quatre cheminées ont été estimés (cf. paragraphe 2.1 de l'annexe 1).

3.2.2 CONCENTRATIONS DANS L'AIR

Les données de concentration dans l'air ont été collectées auprès d'ATMO Champagne-Ardenne, qui mesure les concentrations journalières de plomb dans l'air à l'aide d'un dispositif de prélèvement en continu (Préleveur A), situé à 120 mètres des cheminées de l'usine (cf. paragraphe 2.2 de l'annexe 1).

3.2.3 DEPOTS AU SOL

Les dépôts mensuels de particules et de plomb sont mesurés en quatre points du village grâce à des jauges Owen dont le suivi est assuré par Métal-Blanc. Malheureusement, les mesures réalisées semblent présenter une incertitude élevée compte-tenu du dispositif de prélèvement employé (réceptacle de gros volume difficile à rincer) ; la confiance pouvant être accordée à ces données semble limitée (cf. paragraphe 2.3 de l'annexe 1).

Une campagne de mesure des dépôts mensuels a donc été réalisée par l'INERIS en octobre et novembre 2005 à l'aide de 16 jauges Owen. Sept d'entre elles ont été réparties selon l'axe nord-est par rapport à l'usine, ce qui correspond à la direction préférentielle du vent (voir les détails et les résultats de cette campagne au chapitre 3 de l'annexe 1).

3.2.4 CONCENTRATIONS DANS LES VEGETAUX

Sur demande de la DRIRE, une trentaine d'échantillons de végétaux (fruits, légumes et feuilles d'arbres) sont prélevés chaque année dans 6 ou 7 jardins de particuliers par la société GSD (Gestion des sites et des sols contaminés). En même temps, des échantillons de terre sont prélevés dans ces jardins (cf. paragraphe 2.4 de l'annexe 1).

3.2.5 CONCENTRATIONS DANS LES SOLS

Deux campagnes de mesures du plomb dans les sols ont été conduites par l'INERIS durant l'été 2006 (voir les détails et les résultats au chapitre 4 de l'annexe 1).

La première a consisté à prélever 48 échantillons de sol superficiel (entre 0 et 2 cm) et 12 échantillons compris entre 0 et 20 cm de profondeur. Ces échantillons composites ont été prélevés dans des zones du domaine public et dans les jardins des particuliers. Pour les sols superficiels, les prélèvements ont été faits dans des zones supposées non retournées, tandis que les échantillons entre 0 et 20 cm ont été prélevés dans les surfaces bêchées des potagers. Ces échantillons ont été analysés à l'INERIS, par spectrométrie d'émission optique avec torche à plasma (ICP/OES).

La seconde campagne de mesures a été effectuée in-situ à l'aide d'un analyseur de terrain par fluorescence X (XRF). 148 zones ont fait l'objet de mesures (voir figures 3, 4 et 5 en annexe 1). Pour vérifier la concordance de ces données avec celles obtenues par ICP/OES, des mesures complémentaires par méthode XRF ont été faites sur site au niveau des points de prélèvements de sol superficiel, ainsi que sur les sols prélevés et préparés en laboratoire pour analyse par ICP/OES.

Parmi les données issues des investigations menées précédemment à Bourg-Fidèle à la demande de la DRIRE, 24 résultats de mesures correspondant à des sols entre 0 et 20 cm ont été utilisés pour compléter notre lot de données (GSC, 2005, ANTEA, 1999 a, b, 2000).

Une étude géostatistique a été menée pour définir sur l'ensemble de la zone habitée, les concentrations dans les sols superficiels d'une part et dans la couche de sol allant de 0 à 20 cm d'autre part.

Le plomb étant peu mobile dans les sols, il ne pénètre pas dans les horizons de profondeur, et tend à s'accumuler dans les premiers centimètres. Ainsi, l'hypothèse a été faite que les concentrations mesurées en 2006 dans les sols sont représentatives des concentrations présentes en 2002, lors de la campagne de plombémie. Sous réserve qu'aucune autre source de plomb n'ait été ajoutée au sol et que le sol superficiel n'ait pas été remanié depuis 2002, cette hypothèse semble raisonnable, puisqu'un dépôt atmosphérique, tel que celui mesuré lors de la campagne d'octobre–novembre 2005 (alors que les émissions mesurées aux cheminées étaient supérieures à la moyenne), conduirait au bout de 4 ans à un enrichissement en plomb de la couche superficielle inférieure à 5%.

3.2.6 DONNEES DE PLOMBEMIE

Trois campagnes de dépistage de la plombémie chez les enfants habitant Bourg-Fidèle ou fréquentant l'école du village ont été organisées par la DDASS des Ardennes de 1998 à 2003. Toutefois, les travaux de comparaison entre les plombémies mesurées et celles modélisées n'ont porté que sur la campagne de juin 2002, car c'est la seule pour laquelle des informations sur les conditions d'exposition de chaque enfant sont disponibles.

3.3 MODELES UTILISES

Ce programme de recherche visant à apprécier la pertinence des outils de calcul aujourd'hui disponibles et à améliorer la qualité des estimations prospectives des expositions, réalisables dans le cadre des études d'impact, il a été décidé de se limiter aux outils de calculs facilement utilisables pour ce type d'études. Par ailleurs, malgré l'existence de différents modèles de dispersion atmosphérique et de calcul des plombémies, un seul modèle pour chacune de ces deux étapes a été retenu, afin de limiter les combinaisons de modélisation possibles et de concentrer l'étude sur les modèles multimédia, qui sont au cœur de l'activité d'expologie.

Ainsi, pour la dispersion atmosphérique, le logiciel ADMS version 3.3 (Atmospheric Dispersion Modelling System, CERC, 2001) a été choisi, car il s'agit d'un modèle reconnu par la communauté scientifique, validé par l'INERIS (fiche technique DI0771) et utilisé dans la plupart des évaluations de risque réalisées pour des ICPE à l'INERIS dans des contextes de relief peu accidentés.

Quatre modèles, codés sous Excel, ont été utilisés pour le calcul des concentrations dans l'environnement :

- HHRAP (Human Health Risk Assessment Protocol for Hazardous Waste Combustion Facilities). Il s'agit d'une méthode de calcul développée par l'Office of Solid Waste (US EPA, 2005) permettant d'estimer les risques chroniques liés aux émissions d'une installation à partir des concentrations atmosphériques et des retombées au sol de polluants dans la zone d'étude ;
- le modèle INERIS. Cet outil développé en interne sous Excel, est basé sur des équations et des paramètres provenant de la littérature scientifique relative à l'évaluation des risques. Par rapport à HHRAP, il prend en compte des éléments supplémentaires comme une couche de sol de 0 à 10 cm pour représenter de manière plus fine la contamination du fourrage destiné aux animaux, le dépôt sur les végétaux des particules du sol remises en suspension, la contamination directe du feuillage des légumes-feuilles par l'eau d'arrosage. Il s'agit d'un outil de calcul évolutif et adaptable à chaque cas d'étude ;
- les versions 2.3 et 4 du logiciel CalTOX. Les deux versions de ce logiciel, développées par l'Université de Berkeley (University of California, 1993, 1997, LBNL, 2002, McKone *et al.*, 2003), sont disponibles sur internet. La version 2.3 a été conçue pour aider à évaluer les expositions humaines liées à des sites pollués, même si elle permet aussi de prendre en compte d'autres sources. Quant à la version 4, elle a été surtout utilisée dans des applications à une échelle régionale, avec des émissions de polluants continues, dans les milieux : sol, eau et air. Dans ces deux logiciels, l'environnement est divisé en compartiments homogènes et les concentrations dans les milieux sont calculées à l'aide d'un système d'équations représentant les transferts de polluants entre les compartiments. Entre ces deux versions, il existe des différences importantes dans la représentation mathématique des transferts de polluants dans les sols et vers les végétaux (INERIS, 2007).

Les concentrations dans l'environnement sont ensuite utilisées pour calculer les doses de plomb administrées et reçues par les enfants selon les mêmes hypothèses, quel que soit le modèle multimédia utilisé (en d'autres termes, seuls les modules de transfert des modèles multimédia sont utilisés, les modules d'exposition propres à chaque modèle ne le sont pas).

Pour l'estimation de la plombémie, le modèle IEUBK (Integrated Exposure Uptake Biokinetic model for lead in children, US EPA, 1994 a, b) a été retenu, car il s'agit du modèle le plus largement utilisé dans les ERS pour estimer la plombémie chez les enfants. Toutefois, il a été nécessaire de le recoder sous Excel, afin de pouvoir attribuer aux données d'entrée de IEUBK, les distributions souhaitées, et pouvoir coupler ce modèle aux modèles multimédia, en utilisant les distributions de sortie obtenues pour les concentrations dans les milieux environnementaux, comme données d'entrée de IEUBK. En outre, cette nouvelle version permet de tenir compte des variations mensuelles de concentration dans les milieux, alors que les paramètres d'entrée et les variables de sortie sont définis sur une base annuelle dans le modèle original.

Enfin, les calculs probabilistes ont été réalisés à l'aide du logiciel Crystal Ball (Decisioneering, 2000, 2007).

Une présentation plus complète de ces différents modèles est fournie en annexe 3.

3.4 DEFINITION DES DONNEES D'ENTREE DE LA MODELISATION

Des valeurs ponctuelles (déterministes) et des distributions statistiques pour chacun des paramètres d'entrée des modèles multimédia et de IEUBK ont été définies. ADMS ne permettant pas la conduite de calculs probabilistes, différentes simulations ont été réalisées pour tester la sensibilité du modèle aux paramètres d'entrée.

3.4.1 ATTRIBUTION DE VALEURS DETERMINISTES ET DE DISTRIBUTIONS AUX PARAMETRES D'ENTREE DES MODELES POUR L'ETUDE DU CAS TYPE

Les travaux sur l'analyse du cas type ont été menés à partir de quatre chaînes de modélisation, chacune étant basée sur un des modèles multimédia présentés dans le paragraphe 3.3.

Les niveaux d'exposition et de risque ont été estimés sur une zone correspondant à l'emplacement du préleveur de polluants atmosphériques A.

3.4.1.1 DEFINITION DU TERME SOURCE D'EXPOSITION

Pour estimer l'impact d'une contamination atmosphérique en un point, les modèles HHRAP et INERIS requièrent, en donnée d'entrée, la concentration de polluant dans l'air et le flux de polluant déposé au sol en ce point. Dans le cas d'une contamination atmosphérique, CalTOX utilise, soit le flux d'émission pour estimer les concentrations moyennes dans les milieux sur une zone contenant la source, soit la concentration dans l'air au point d'étude pour calculer en ce point les concentrations correspondantes dans les autres milieux. Pour assurer sur le cas type, une meilleure comparabilité des résultats entre modèles, la concentration dans l'air au point d'intérêt a été utilisée comme donnée d'entrée de CalTOX.

Compte-tenu du manque de représentativité des résultats obtenus avec ADMS pour les concentrations dans l'air et les dépôts de plomb au sol (cf. section 4.2), le terme source de la contamination a été défini à partir des concentrations mesurées dans l'air et d'un dépôt au sol calculé à l'aide d'un modèle statistique, établi à partir de la campagne de mesures des dépôts réalisés par l'INERIS. L'estimation de la plombémie devant intégrer toutes les sources d'exposition, y

compris celle liée à la présence ubiquitaire du plomb dans l'environnement, la concentration de plomb dans les sols liée au bruit de fond a également été prise en compte.

3.4.1.2 DEFINITION DES AUTRES PARAMETRES D'ENTREE

Pour que la comparaison entre les approches mathématiques utilisées par les différents modèles puisse être pertinente, il a été nécessaire d'homogénéiser les valeurs des paramètres d'entrée utilisés dans les différents modèles multimédia.

Pour les paramètres environnementaux, les paramètres d'exposition et les taux d'absorption, les valeurs déterministes et les distributions utilisées ont été définies, soit en confrontant les données proposées dans différentes sources bibliographiques (évaluations de risque de référence, documentation scientifique associée à des modèles, informations issues d'internet), soit à partir d'enquêtes sur la population française.

Quant aux paramètres du plomb (coefficient de partage particules du sol-eau du sol (K_d), coefficient de transfert sol-plante (K_{ps}), coefficient de transfert vers la viande (B_v), coefficient de transfert vers le lait (B_l), coefficient de biodisponibilité relative à partir du sol (B_s)), ils ont fait l'objet d'un travail spécifique, basé sur une analyse approfondie de la littérature scientifique. Une définition soignée des valeurs de ces paramètres est importante, car leur effet prépondérant dans l'incertitude paramétrique des modèles multimédia d'exposition a été démontrée à plusieurs reprises (INERIS, 2004, 2005, 2006).

Pour chaque donnée, les conditions d'obtention ont été recherchées. Les valeurs obtenues dans des conditions non satisfaisantes ont été éliminées (exemple : valeurs de K_{ps} obtenues sur des végétaux poussant dans une zone de retombées d'une usine émettant du plomb). Les facteurs pouvant avoir une influence sur la valeur de ces paramètres ont été également recherchés à partir de la bibliographie et par analyse statistique, quand ces données étaient suffisamment nombreuses. Un ensemble de critères de notation a ensuite été établi, afin de définir pour chaque valeur une note représentative de sa qualité intrinsèque et de sa pertinence par rapport aux conditions d'exposition étudiées. Une distribution de probabilité a alors été ajustée à cet ensemble de valeurs notées, selon l'approche par bootstrap proposée par Durrieu *et al.* (2006).

Les valeurs ponctuelles et les distributions affectées à chaque paramètre d'entrée des modèles et les bases sur lesquelles reposent ces hypothèses sont fournies en annexe 5.

3.4.2 DEFINITION DES DONNEES D'ENTREE POUR LA COMPARAISON MESURES/MODELES

Pour l'exercice de comparaison mesures/modèles, deux chaînes de modélisation ont été utilisées :

- la première (appelée par la suite modèle A), composée de CalTOX 4 et du modèle IEUBK recodé sous Excel, vise à représenter la distribution des concentrations de plomb dans les milieux sur l'ensemble du village et pour l'ensemble de enfants y habitant, à partir de l'estimation du flux total de plomb émis et des concentrations de plomb dans les sols ;

- la seconde (appelée par la suite modèle B), construite à partir du modèle statistique établi pour les dépôts au sol (cf. section 4.2), du modèle INERIS et de la version recodée de IEUBK, permet de calculer la plombémie en un lieu précis, en prenant en compte les conditions d'exposition d'un enfant donné (âge, date d'arrivée dans le village, proportion de fruits et légumes consommés issus du jardin familial, consommation ou non d'eau du robinet, dépôts de plomb au sol et concentration de plomb dans le sol de la parcelle où réside l'enfant).

L'information sur le lieu de résidence précis de chaque enfant n'ayant pas pu être obtenue, des hypothèses ont dû être faites sur celui-ci, à partir des éléments disponibles (distance de l'habitation à l'usine, secteur d'implantation, position des habitations sur la photo IGN du village). Dans certains cas, seules une ou deux parcelles correspondent au croisement de ces informations. Mais dans la majorité des cas, les possibilités de localisation sont multiples. Dans ces conditions, il n'était pas possible, pour des contraintes de temps de modéliser le niveau de plombémie pour chaque enfant testé lors de la campagne de dépistage. Le choix a donc été fait de travailler sur le cas de quelques enfants pour lesquels les possibilités de localisation de leur habitation étaient réduites et présentant des conditions d'exposition contrastées (forte, faible ou absence de consommation de fruits et légumes du jardin, localisation proche ou éloignée de l'usine, fort ou faible niveau de plombémie). Les cas de 9 enfants correspondant à 15 emplacements possibles ont ainsi été modélisés.

Les niveaux de contamination rejetés par l'usine ayant beaucoup diminués depuis les années 1999-2000, la période d'exploitation à prendre en compte pour cet exercice d'évaluation rétrospective des expositions a dû être défini.

La demi-vie du plomb dans le sang est estimée à un mois. Même si le plomb est stocké dans les os et est lentement relargué dans le sang, il a été montré qu'une réduction de la dose de plomb administrée conduit à une réduction de la plombémie relativement rapide (Declercq *et al.* 2004). Des tests réalisés avec IEUBK vont également dans ce sens, puisque les calculs montrent que suite à une surexposition au plomb pendant plusieurs années, le niveau de plombémie peut redevenir quasiment normal une année après l'arrêt de cette surexposition (cf. article 1, section B).

Dans ces conditions, l'effort de reconstruction des doses d'exposition passées des enfants inclus dans le dépistage de plombémie, s'est focalisé sur la période allant de mars 2001 (période d'apparition des premiers fruits et légumes consommés à partir de juin 2001) à juin 2002, date de réalisation du dépistage. Les conditions d'exposition sur la période antérieure sont supposées égales aux conditions moyennes relevées entre janvier et juin 2001.

Le terme source de l'exposition a été défini à partir des données collectées sur le site. Les informations issues de l'enquête menée auprès des enfants testés ont été utilisées pour définir les paramètres d'exposition. Les autres paramètres pour lesquels il n'existe pas d'information spécifique sont renseignés avec les mêmes valeurs que dans l'étude du cas type. Pour CalTOX 4, toutefois, la plupart des distributions fournies par défaut pour renseigner les paramètres du modèle de transfert ont été réutilisées (sauf celles relatives au coefficient de partage

particules du sol-eau¹, à la surface de la zone d'étude, à la hauteur de la couche racinaire et aux paramètres du climat).

Le lecteur se reportera à l'article 1 de la section B et/ou à l'annexe 5 pour connaître le détail des distributions attribuées à chaque paramètre.

1 La distribution fournie dans le modèle était visiblement erronée, comme l'ont confirmé les concepteurs de CalTOX

4 RESULTATS ET DISCUSSION

4.1 COMPARAISON DES METHODES D'ANALYSE PAR ICP/OES ET PAR XRF

Les résultats obtenus ont fait l'objet d'une publication et d'un poster dans le cadre du congrès CONSOIL 2008 (voir l'article 2 de la section B).

En résumé, les analyses faites par XRF à l'aide de l'analyseur de terrain et celles réalisées par ICP/OES selon la méthode d'analyse classique sur 23 échantillons séchés, broyés et tamisés à 250 µm montrent une très bonne correspondance de résultats entre les deux méthodes. Entre les deux jeux de données, le coefficient de corrélation est de 0,99. Quant au coefficient de régression permettant d'estimer la mesure par ICP/OES à partir de la mesure par XRF, il vaut 0,92.

La comparaison des mesures *in situ* par XRF et de celles effectuées au laboratoire par ICP/OES sur des échantillons composites prélevés sur la zone correspondante montre un coefficient de corrélation identique (à partir de 24 paires de résultats). En revanche, le coefficient de régression obtenu entre les deux jeux de données s'avère plus faible (0,67), les valeurs mesurées par XRF tendant à être plus fortes.

Selon les zones de prélèvement, une ou plusieurs mesures par XRF ont été effectuées. En complément d'une mesure à côté du trou de prélèvement central, des mesures complémentaires ont pu être faites à côté des autres trous de prélèvement ou/et au fond des cuvettes laissées par ces prélèvements composites. Or, l'analyse des résultats sur les points ayant fait l'objet de plusieurs mesures par XRF montrent qu'il existe une variabilité locale des teneurs en plomb dans le sol, des différences de concentration supérieures à 100% ayant été obtenues pour un même point de prélèvement. Pour les points de prélèvement où des mesures par XRF ont été réalisées à la fois à côté des trous et au fond des cuvettes de prélèvement, les différences entre les moyennes calculées à partir de ces deux types de données vont jusqu'à 70%.

En utilisant la plus faible des deux moyennes, une relation linéaire, caractérisée par un coefficient de régression égal à 1 et un écart-type résiduel plus faible que précédemment, peut être obtenue entre les mesures par XRF et les mesures par ICP/OES.

La différence de résultats entre les mesures *in situ* par XRF et les mesures en laboratoire par ICP/OES, puis l'amélioration de la correspondance des résultats après remplacement de la valeur moyenne mesurée par XRF par la plus petite des deux moyennes décrites ci-dessus peut s'expliquer par la différence d'emprise et de représentativité spatiale des deux méthodes d'analyse d'une part, et par la faible mobilité du plomb dans le sol d'autre part. Les mesures *in situ* par XRF donne une teneur de plomb dans le sol pour une surface d'environ 1 cm² et une hauteur de sol très limitée, tandis que les prélèvements effectués correspondent chacun à environ cinq fois 10 cm² de sol et une hauteur d'environ 2 cm. Une dilution de la contamination dans le volume prélevé par rapport au volume analysé par mesure XRF est donc possible.

Finalement, les résultats obtenus montrent que les mesures in-situ par XRF constituent une approche de substitution rapide et suffisamment fiable par rapport à la méthode de mesure traditionnelle. Compte-tenu de la variabilité spatiale des concentrations de plomb à petite échelle et de la faible surface investiguée lors de chaque mesure, il est toutefois recommandé de réaliser plusieurs mesures ponctuelles peu éloignées pour caractériser un point par cette méthode. Il faut enfin souligner son intérêt pour estimer l'exposition des enfants par ingestion direct de sol, puisque lors d'une approche par échantillonnage, la hauteur de sol prélevé et analysé peut en fait être supérieure à celle réellement en contact avec les enfants.

4.2 COMPARAISON DES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET DES DEPOTS AUX SOLS MESURES AVEC LES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET LES DEPOTS AUX SOLS MODELISES²

De janvier 2002 à novembre 2005, pour les mois où l'INERIS disposait des données météorologiques, les moyennes mensuelles des concentrations attendues au niveau du préleveur A ont été estimées par ADMS, en prenant en compte les flux mensuels des émissions canalisées.

La figure 1 présente les concentrations modélisées au niveau du préleveur et les moyennes mensuelles des concentrations attribuables à l'usine d'après les mesures fournies par l'appareil. Les concentrations attribuables à l'usine ont été calculées en retranchant des concentrations moyennes mesurées les jours de semaine, les concentrations moyennes mesurées durant les week-ends.

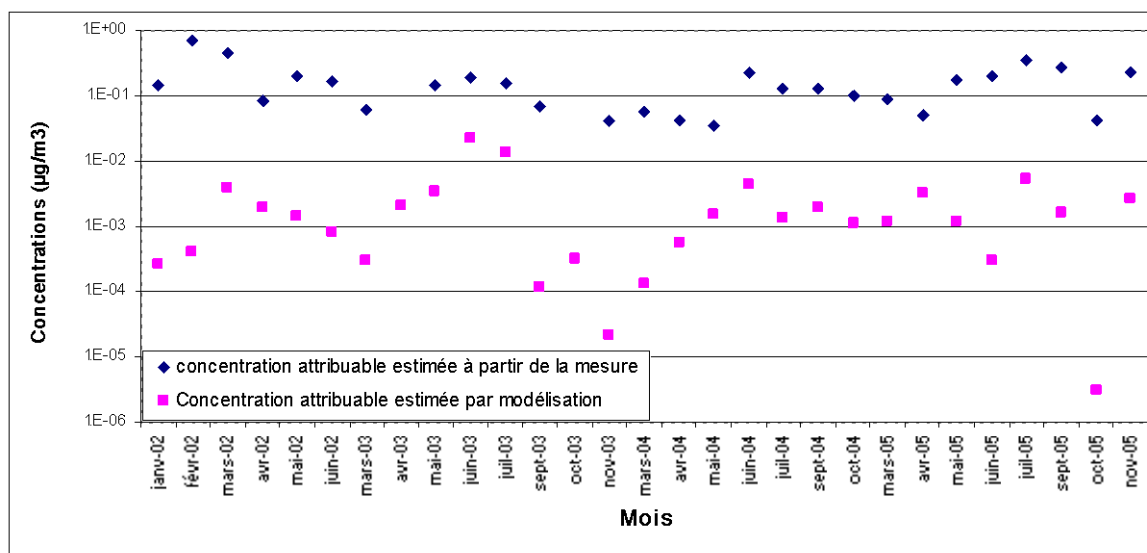


Figure 2 : Comparaison des concentrations atmosphériques mesurées et des concentrations atmosphériques modélisées

² Les résultats synthétisés dans cette partie sont détaillés dans l'annexe 4.

La moyenne géométrique des rapports « concentration issue de la mesure » sur « concentration modélisée » est supérieure à 100. Pour vérifier que le problème de sous-estimation des concentrations moyennes mesurées n'est pas lié à une sous-estimation des flux canalisés (qui sont mesurés pendant quelques heures chaque mois), les concentrations atmosphériques de plomb relevées le jour du prélèvement ont été comparées à celles modélisées, en fonction des données météorologiques du jour du prélèvement. Les résultats obtenus ne sont pas meilleurs.

Les dépôts mesurés par jauges Owen lors de la campagne menée en octobre et novembre 2005 par l'INERIS ont été comparés à ceux modélisés par ADMS pour ces deux mois. Même en considérant le dépôt mesuré dans les jauges les plus éloignées de l'usine (jauges 11 et 12, voir annexe 1) comme indépendant des retombées générées par celle-ci et donc correspondant au bruit de fond, les dépôts attribuables à l'usine (dépôts mesurés moins bruit de fond) sont supérieurs de plusieurs ordres de grandeur à ceux modélisés par ADMS à partir des émissions canalisées.

L'impact du paramétrage utilisé dans ADMS a été testé. L'augmentation de la valeur attribuée à la rugosité, la modification de la masse volumique des particules et la prise en compte ou non des bâtiments n'a pas d'effet sur les données estimées dans le cas présent. Seule la modification de la granulométrie des particules émises a un impact sensible sur les valeurs estimées. Les simulations initialement réalisées à partir des données d'une courbe granulométrique (obtenue à l'amont des filtres de cheminée) limitée aux particules de diamètre inférieur à 3 μm (diamètre de coupure des filtres de cheminée) ont été refaites pour différentes conditions granulométriques. Il apparaît que la prise en compte de particules plus grosses améliore les résultats. La figure 2 montre ainsi que les valeurs de dépôts modélisés se rapprochent des données mesurées quand tout le profil granulométrique est considéré. La différence entre les concentrations mesurées dans l'air et celles modélisées reste toutefois importante. Il faut aussi souligner que les rapports « dépôts mesurés » sur « dépôts modélisés » diminuent nettement avec la distance à l'usine (voir aussi annexe 4).

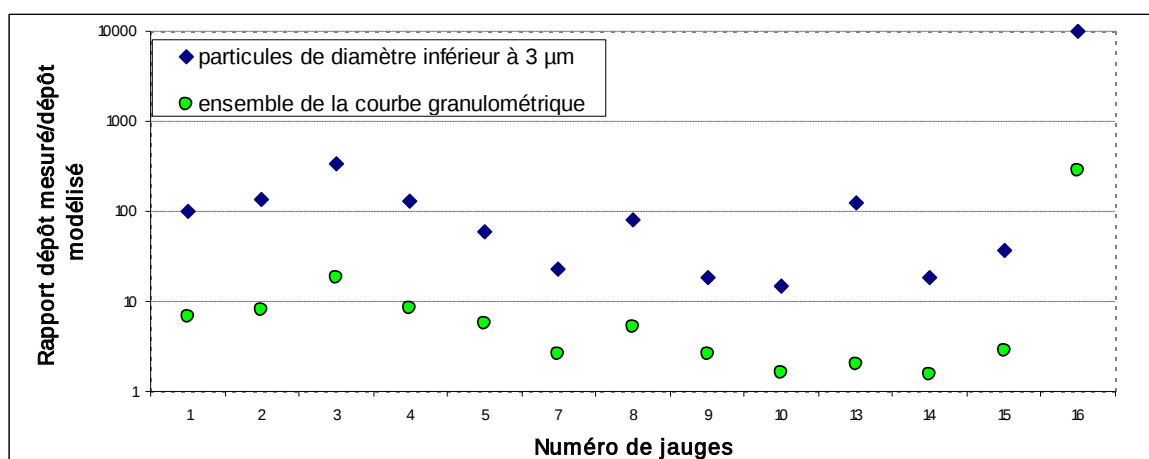


Figure 3 : Rapport entre les dépôts mesurés en novembre 2005 dans les différentes jauges et les dépôts estimés par modélisation aux emplacements correspondants

L'ensemble de ces observations indiquent qu'il existe une autre source de contamination par le plomb non prise en compte lors des essais de modélisation. En l'absence d'autres activités industrielles génératrices d'émissions atmosphériques de plomb dans le village, il peut s'agir d'émissions diffuses liées à l'activité de l'usine ou à la remise en suspension des poussières de plomb déposées au sol par le vent ou par des perturbations mécaniques. Les concentrations mesurées le week-end étant sensiblement inférieures à celles mesurées la semaine depuis 2002 (année depuis laquelle l'usine ne fonctionne plus le samedi et le dimanche) et celles mesurées en août (mois d'arrêt de l'activité de l'usine) étant également inférieures à celles des autres mois (sauf en 2003), il semble que cette source de contamination complémentaire soit principalement liée à l'usine, qu'il s'agisse d'émissions liées à la production ou au trafic routier associé à l'activité de l'usine.

Des calculs ont été conduits, en définissant sous ADMS, une source diffuse figurant, soit le volume des bâtiments, soit la surface occupée par les bâtiments et les surfaces goudronnées de l'usine. Par modélisation inverse, en utilisant les valeurs de dépôts mesurées en octobre et en novembre 2005 et une approche d'ajustement par moindres carrés, il est possible d'obtenir des profils de dépôts plus proches de celui mesuré que celui issu d'une modélisation basée sur les seuls flux canalisés (cf. Figure 4). Le flux d'émission diffuse estimé par cette approche varie selon les hypothèses retenues. En utilisant l'ensemble du profil granulométrique pour caractériser cette source diffuse, des valeurs mensuelles comprises entre 25 et 73 kg ont été obtenues, alors que les quantités de plomb canalisé émises sont, elles, estimées à 19 kg en octobre 2005 et à 11 kg en novembre 2005.

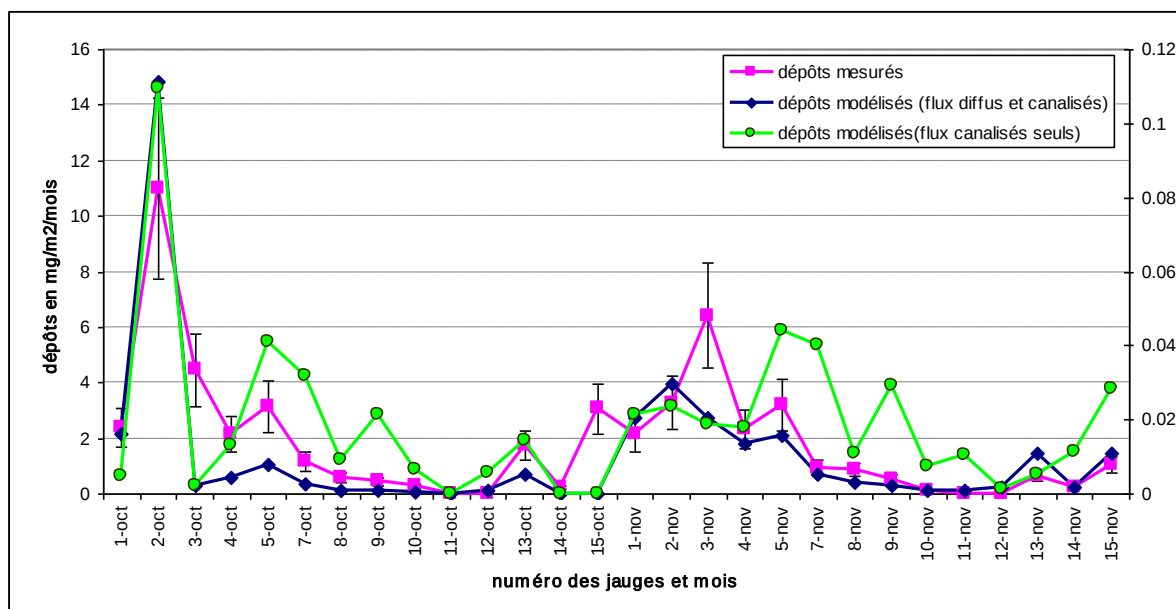


Figure 3 : Dépôts mesurés et calculés en octobre et novembre 2005 (les dépôts mesurés et ceux calculés à partir de la somme des flux canalisées et diffus se lisent sur l'échelle des ordonnées de gauche, les valeurs de dépôts modélisés à partir des seuls flux canalisés se lisent sur l'échelle de droite)

Même si les estimations obtenues par modélisation inverse présentent une variabilité importante, les observations faites sur les concentrations et les dépôts mesurés, ainsi que les comparaisons réalisées avec la modélisation démontrent le rôle important des émissions diffuses dans la contamination ; cela, malgré les mesures mises en place à la demande de la DRIRE pour les maîtriser³.

L'estimation des dépôts au sol avec ADMS n'étant pas possible sans définir en entrée une source diffuse, qui n'a pu être caractérisée par la mesure, une approche alternative a été recherchée pour définir le dépôt au sol. Un modèle statistique a été défini, en utilisant les données de dépôts mesurées lors des campagnes d'octobre et novembre 2005. Le meilleur coefficient de détermination ($\Delta^2=0,93$) a été obtenu avec la relation suivante :

$$\log \text{dep} = 0,35 - 0,17.10^{-3} \times D + 1,31 \times W + 1,4.10^{-5} \times E$$

avec dep : quantité totale de plomb déposé par mois ($\text{mg}/\text{m}^2/\text{mois}$),

W : fréquence du vent soufflant de l'usine vers le point considéré (-),

D : distance des bâtiments de l'usine au point considéré (m),

E : quantité mensuelle de plomb émise aux cheminées (g/mois).

Même si la relation n'a été établie que sur deux mois de mesures, il convient de noter que l'ensemble des coefficients de cette relation sont statistiquement significatifs. Cette relation a été utilisée pour estimer la plombémie des enfants en fonction de leur lieu d'habitation.

³ Afin de mettre en évidence l'impact du flux diffus sur l'exposition, les doses d'exposition et le niveau de plombémie attendus à partir du flux total d'émission (flux diffus plus flux canalisé mesuré lors d'une période de fonctionnement normal, sans dépassement des valeurs limites réglementaires) ont été comparés aux doses d'exposition et niveau de plombémie estimés à partir du flux canalisé maximal autorisé par l'arrêté préfectoral (cf. annexe 6).

4.3 COMPARAISON DES RESULTATS DES CHAINES DE MODELISATION SUR LE CAS TYPE

Ce paragraphe synthétise les principales informations issues de la comparaison des différentes chaînes de modélisation testées. Pour rappel, ces chaînes de modélisation diffèrent par leur maillon central, à savoir le modèle multimédia utilisé.

Le Tableau 1 et le Tableau 2 présentent les valeurs déterministes et les éléments statistiques caractérisant respectivement les distributions des doses d'exposition externe et des niveaux de plombémie calculés avec les différentes chaînes de modélisation⁴.

Tableau 1 : Doses d'exposition pour la tranche des 1-3 ans

Modèle multimédia utilisé	Valeur déterministe	Percentile correspondant	%>VTR *	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Modèle INERIS	$3,3.10^{-3}$	> 99	< 1	$8,7.10^{-4}$	$3,5.10^{-4}$	$2,4.10^{-3}$	6,9
HHRAP	$6,4.10^{-3}$	> 98	19	$2,3.10^{-3}$	$1,1.10^{-3}$	$4,8.10^{-3}$	4,6
CalTOX 2.3	$3,8.10^{-2}$	91	81	$8,3.10^{-3}$	$1,5.10^{-3}$	$5,4.10^{-2}$	36
CalTOX 4	$1,2.10^{-2}$	98	72	$7,8.10^{-3}$	$5,8.10^{-4}$	$6,6.10^{-2}$	114

*: Valeur toxicologique de référence. Pour le plomb, elle est égale à $3,45.10^{-3} \text{ mg.kg}^{-1}.\text{j}^{-1}$ (OMS, 1993).

⁴ Les doses d'exposition correspondent à la somme des doses liées à l'ingestion de sol et à la consommation de produits d'origine végétale et animale autoproduits. Elles ne prennent pas en compte l'exposition liée à l'inhalation, car la dose correspondante est toujours faible par rapport à la dose d'exposition par ingestion et cette dose est identique quel que le modèle multimédia puisque dans tous les cas les concentrations dans l'air sont estimées à l'aide d'ADMS. En outre, il s'agit de doses attribuables à l'installation industrielle, qui n'intègrent pas l'exposition liée au bruit de fond.

Les niveaux de plombémie, en revanche, renvoient à l'exposition totale des individus. Ils intègrent donc les doses d'exposition attribuables à l'installation, ainsi que l'exposition liée au bruit de fond (cf. le paragraphe 2.3.2.6 de l'annexe 5 concernant l'exposition ubiquitaire par l'alimentation et l'eau consommée).

Les résultats présentés concernent la classe d'âge ayant les niveaux de risque les plus élevés. Il s'agit des enfants de 1-1,5 ans qui ont systématiquement les niveaux d'exposition les plus élevés. Leur exposition ne durant toutefois que six mois, une moyenne pondérée a été calculée entre le niveau d'exposition des enfants de 1-1,5 ans et ceux de 1,5-3 ans, afin d'obtenir une dose d'exposition pouvant être considérée comme chronique. Pour la plombémie, la valeur fournie correspond à la moyenne des niveaux de plombémie calculée de 13 à 24 mois.

Le Tableau 1 montre des différences sensibles de résultats entre les modèles. CalTOX 2.3 donne l'estimation la plus haute par le calcul déterministe. Le modèle INERIS donne les estimations les plus basses en approches déterministe et probabiliste. On compte un facteur 12 entre l'estimation déterministe la plus haute et la plus basse, un facteur 10 entre la médiane la plus haute et la plus basse et un facteur 28 entre le percentile 95 le plus haut et le plus bas. La probabilité que la dose d'exposition dépasse la valeur toxicologique de référence (VTR) va d'une probabilité très faible (inférieure à 1%) pour le modèle INERIS à plus de 80 % pour CalTOX 2.3. Les distributions fournies par les modèles INERIS et HHRAP sont en fait incluses dans celles obtenues à partir des différentes versions de CalTOX.

Tableau 2 : Plombémie des enfants de 1-2 ans (µg/l)

Modèle	Valeur déterministe	Percentile correspondant	%>100 µg/l *	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Modèle INERIS	93	98	<1	44	27	78	2,9
HHRAP	131	> 98	9	65	38	110	2,9
CalTOX 2.3	365	92	73	151	53	442	8,3
CalTOX 4	196	65	66	144	37	497	14

* : 100 µg/l correspond au seuil d'intervention sanitaire

Comme pour les doses d'exposition, on observe des différences de résultats importantes entre les modèles, même si la prise en compte de l'exposition ubiquitaire dans le calcul de la plombémie tend à atténuer ces différences.

Entre le modèle fournissant l'estimation de la plombémie la plus forte et celui donnant l'estimation la plus faible, il y a un facteur 3,9 en approche déterministe, un facteur 3,4 pour la médiane et un facteur 6,3 sur les percentiles 95. Comme pour les doses d'exposition, CalTOX 4 donne les distributions les plus étalées.

Ces différences de résultats peuvent conduire en termes sanitaires à des conclusions divergentes, puisque avec le modèle INERIS, la probabilité de dépasser la valeur repère fixée à 100 µg/l est très faible (< 1%), alors que cette probabilité atteint 73% avec CalTOX 2.3.

Principales voies d'exposition et milieux environnementaux contributeurs

Les figures ci-dessous présentent les doses d'exposition estimées par chacun des modèles à différents percentiles et selon une approche déterministe.

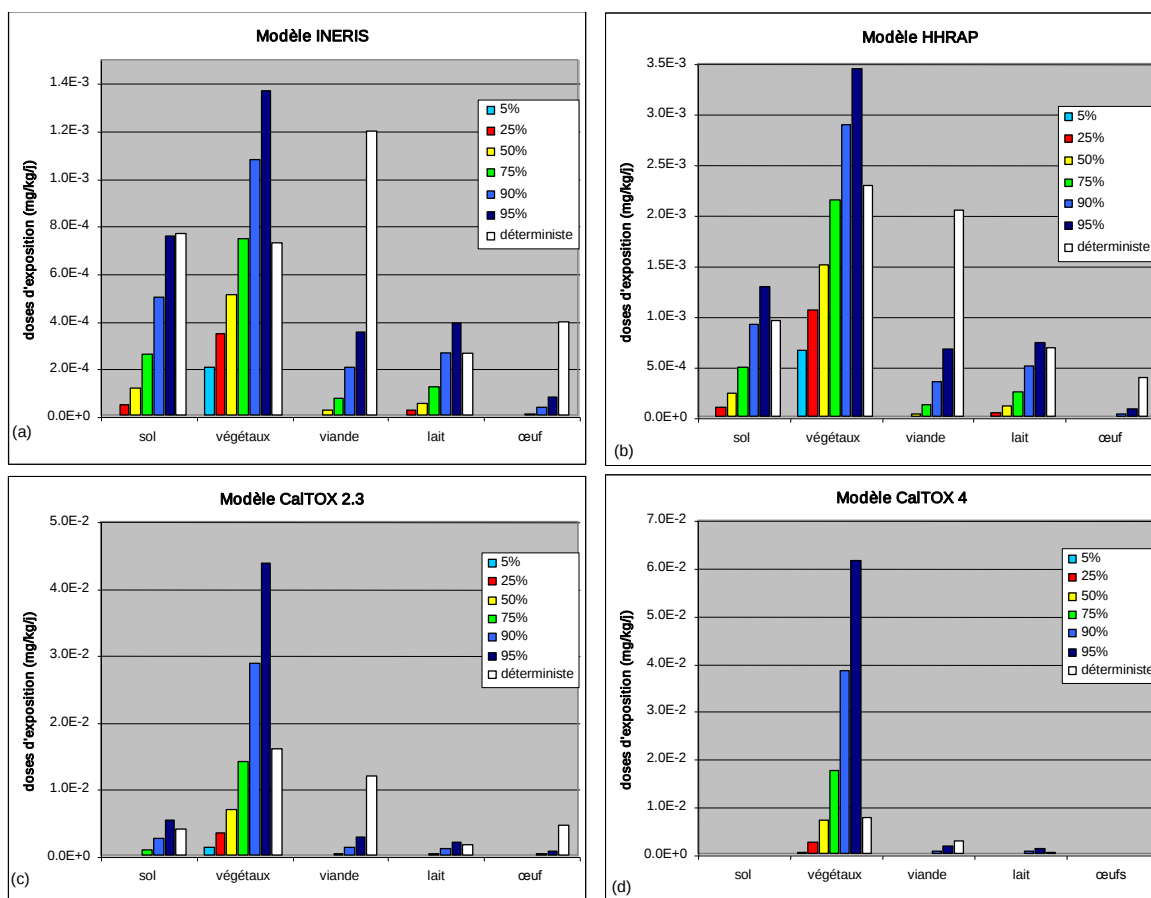


Figure 4 : Doses d'exposition liées aux différentes voies selon les approches déterministe et probabiliste

Ces figures montrent que les voies qui paraissent contribuer le plus à l'exposition ne sont pas nécessairement les mêmes lors d'un calcul déterministe et lors d'un calcul probabiliste. Par exemple, pour le modèle INERIS, l'approche déterministe donne l'ingestion de viande et l'ingestion de sol comme les deux premières voies d'exposition. En revanche, les résultats de l'estimation probabiliste montrent que l'ingestion de viande est faible et que c'est l'ingestion de légumes et de fruits qui est prépondérante.

La même observation peut être faite concernant la contribution des milieux environnementaux (sol superficiel, sol racinaire et air) à l'exposition (cf. Figure 5). D'après le calcul ponctuel réalisé avec le modèle INERIS, la contribution du sol superficiel à l'exposition est prépondérante (elle est supérieure d'un facteur 2,4 à celle de l'air). Pourtant, la dose d'exposition médiane liée au sol superficiel est inférieure de moitié à celle de l'air. De même, avec CalTOX 2.3, l'estimation ponctuelle de la dose d'exposition due au sol superficiel est supérieure à celle de l'air, alors que jusqu'au 50^{ème} percentile, la dose d'exposition liée à l'air est en fait supérieure à celle due au sol superficiel.

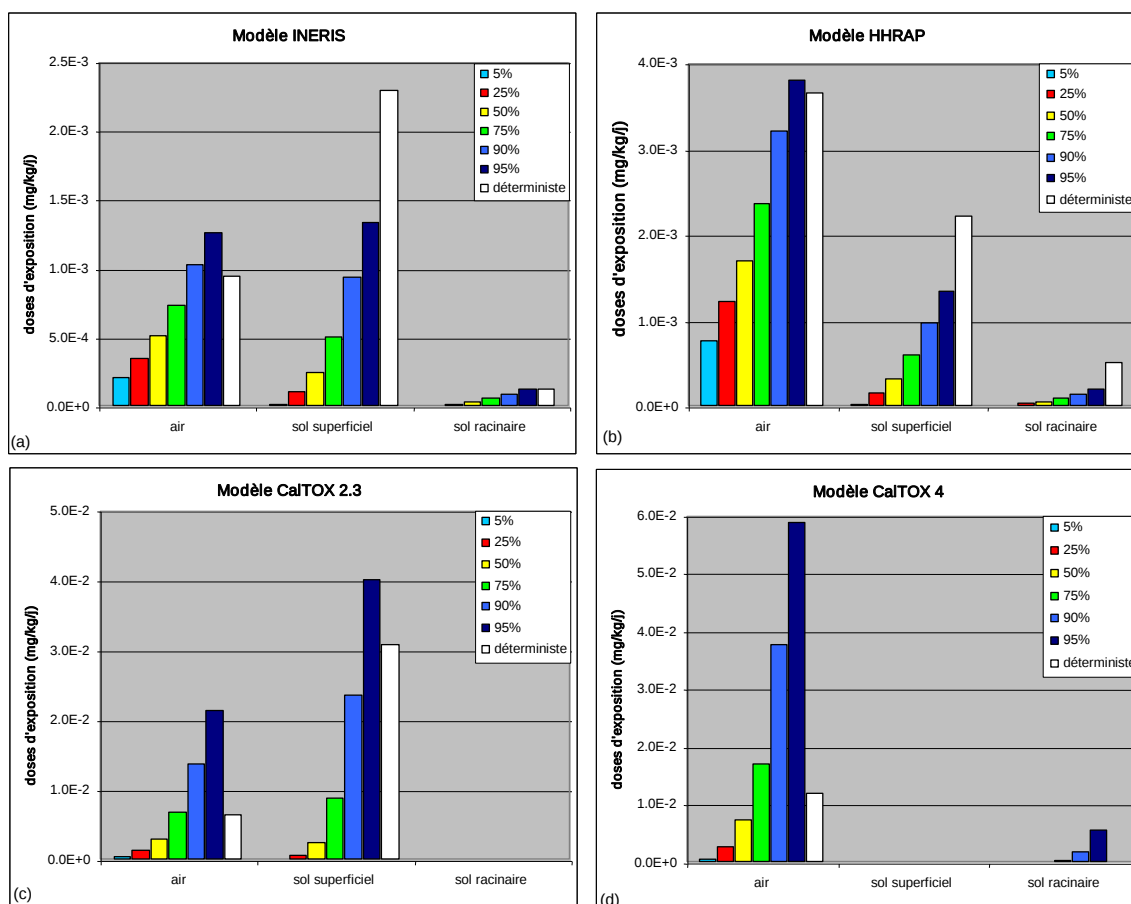


Figure 5 : Doses d'exposition liées aux différents milieux environnementaux selon les approches déterministe et probabiliste

Ces différences s'expliquent par la définition des paramètres, notamment des paramètres de transfert. Comme dans la plupart des études, les valeurs les plus fortes relevées dans le jeu de données disponibles ont été utilisées comme valeur déterministe pour définir les coefficients de transfert du plomb du sol vers les plantes, les coefficients de transfert vers le lait et la viande de bœuf, ainsi que les facteurs de bioconcentration du plomb dans les œufs, la viande de volaille et celle de porc. Si dans le cadre d'un calcul probabiliste mené avec le modèle INERIS, les distributions statistiques de ces paramètres sont remplacées par les valeurs maximales relevées, sans que les distributions statistiques attribuées aux autres paramètres ne soient modifiées, la dose d'exposition liée à la consommation de viande locale devient la plus élevée et le sol superficiel apparaît comme le principal milieu contribuant à l'exposition, comme dans le cas du calcul déterministe.

Par ailleurs, l'analyse comparée des résultats des différents modèles montre que, même si les contributions des différentes voies et des différents milieux à l'exposition varient selon les modèles, sur un plan qualitatif, les résultats fournis par les chaînes de modélisation au niveau de la médiane sont plus proches que ceux obtenus avec une approche déterministe. En effet, pour toutes les chaînes de modélisation, la dose médiane d'exposition liée à l'ingestion de végétaux est supérieure à celles des autres voies et la dose médiane d'exposition liée à l'air est supérieure à celle des sols superficiel et racinaire.

De fait, les différences de résultats entre les modèles sont dues en premier lieu aux différences de concentrations estimées dans les végétaux exposés aux retombées atmosphériques. Ainsi, le modèle INERIS donne une concentration médiane due aux dépôts atmosphériques dans ces végétaux 13 fois inférieure à celle estimée par CalTOX 4, alors que la quantité de plomb déposé par unité de surface ne varie, elle, que de 12% entre les deux modèles.

Paramètres contribuant le plus à la variance de la dose totale d'exposition

Les paramètres d'entrée ayant l'effet le plus sensible sur la dose d'exposition ont été recherchés. Les pourcentages de contribution à la variance de ces paramètres sont reportés dans le tableau suivant. Ces valeurs ont été calculées à l'aide de Crystal-Ball.

Tableau 3 : Pourcentage de contribution des paramètres d'entrée à la variance

	Modèle INERIS	HHRAP	CalTOX 2.3	CalTOX 4
Paramètres	Variance de l'estimation du dépôt : 36%	Constante de décroissance pour les légumes-feuilles : 21%	Coefficient de partage particules du sol-eau : 35%	Vitesse de dépôt des particules : 51%
	Coefficient de partage particules du sol-eau : 5%	Autoconsommation de légumes : 9 %	Coefficient de partage plante-particules de l'air : 32%	Masse volumique des feuilles : 25%
	Rendement culturel des légumes-feuilles : 5%	Fraction du dépôt humide qui adhère aux végétaux : 6%	Vitesse de dépôt des particules : 12 %	Constante de décroissance pour les légumes-feuilles : 6%
		Quantité de sol ingéré : 6 %	Rainsplash : 6 %	
		Rendement culturel des légumes-fruits : 5%		

Les principaux paramètres apparaissant dans ce tableau sont ceux liés à la définition du dépôt au sol (variance de l'estimation du dépôt, vitesse des particules), le coefficient de partage particules du sol-eau du sol et divers paramètres liés à la contamination des végétaux par l'air (constante de décroissance, masse volumique des feuilles, coefficient de partage plante-particules de l'air, fraction du dépôt humide qui adhère aux végétaux, rendement culturel des légumes-feuilles). Les seuls paramètres d'exposition apparaissant dans ce tableau sont la quantité de sol ingérée par les enfants et l'autoconsommation de légumes.

Dans certains cas, un travail de définition plus précis des paramètres contribuant le plus à la variance permet de réduire l'incertitude paramétrique⁵. Dans le cas de CalTOX 4, modèle multimédia, qui donne dans cette étude, les distributions des variables de sortie les plus larges, il apparaît difficile d'améliorer la précision des résultats, car au delà des limites de connaissances, la vitesse de dépôts des particules (paramètre contribuant le plus à la variance) est un paramètre qui varie beaucoup en fonction, notamment, du diamètre des particules.

5 : l'expression « incertitude paramétrique » doit être ici comprise au sens large. Elle intègre à la fois la variabilité et l'incertitude « vraie », due au défaut de connaissance.

L'analyse de sensibilité pratiquée avec Crystal Ball sur les niveaux de plombémie met en évidence la même liste de paramètres que celle obtenue pour la dose d'exposition, à laquelle il faut ajouter le taux d'absorption orale et la dose d'exposition liée à la consommation d'aliments ayant une origine non locale.

Les différences quantitatives entre les résultats fournis par les différents modèles, le rôle prépondérant joué dans chacun par la contamination des végétaux par dépôts atmosphériques et la sensibilité des modèles multimédia aux paramètres liés à la contamination des végétaux par l'air montrent que la modélisation de ce mode de transfert constitue un axe d'étude prioritaire.

En annexe 6, quelques travaux complémentaires liés à l'impact des distributions affectées à certains paramètres sont présentés. Les résultats obtenus à partir des distributions statistiques définies dans le cadre de ce programme de recherche pour les coefficients de transfert du plomb ont été comparés à ceux obtenus avec les distributions proposées pour ces paramètres par l'US DOe (2003) à partir d'une revue sommaire de la littérature. Les différences relevées, en termes de prépondérance des voies d'exposition confirment l'importance d'un travail approfondi pour définir les distributions à utiliser pour ces paramètres. Des calculs ont également été réalisés à partir de différentes hypothèses pour définir la quantité de sol ingéré et les quantités d'aliments consommés, paramètres pour lesquels la définition des distributions s'était avérée délicate. Ces calculs alternatifs n'ont pas mis en évidence de différences sensibles des résultats.

4.4 COMPARAISON DES CONCENTRATIONS ET DES NIVEAUX D'EXPOSITION MESURES ET MODELISES

Cette partie de l'étude a fait l'objet d'un article soumis à une revue scientifique et incorporé à la section B du présent rapport. Le lecteur pourra s'y reporter pour connaître le détail des résultats et consulter les figures auxquelles les paragraphes suivants font référence.

4.4.1 RESULTATS OBTENUS AVEC LE MODELE A

En l'absence de relation significative entre l'âge des enfants et les plombémies mesurées (DRASS *et al.*, 2002), la distribution des plombémies mesurées a été comparée à la distribution de la plombémie moyenne estimée par le modèle entre 6 mois et 7 ans.

Pour les concentrations dans l'air, le sol superficiel, les végétaux protégés et le sang, le rapport entre la médiane estimée et celle mesurée est comprise entre 0,5 et 1,3. Pour les végétaux exposés, ce ratio est en revanche égal à 18 (cf. figure 2, article 2, section B).

Concernant les distributions, celle des concentrations mesurées et celle des concentrations modélisées pour le sol superficiel sont proches, sauf pour quelques points de prélèvements situés très près du site et présentant des concentrations très élevées. Pour l'air, l'ensemble des valeurs modélisées et mesurées sont proches. En revanche, les concentrations modélisées sont sous-estimées pour les végétaux protégés et surestimées pour les végétaux exposés. Pour le sang, la variabilité des données modélisées est supérieure à celles des données mesurées. Par ailleurs, les concentrations estimées à partir du modèle intégré

sont supérieures à celles estimées à partir des concentrations mesurées dans les milieux.

Une analyse de sensibilité sur la concentration dans les végétaux exposés a été conduite avec Crystal Ball. Les résultats de cette analyse sont présentés dans le tableau 2 de la publication. Les deux paramètres ayant l'effet le plus sensible sur l'estimation des concentrations sont le coefficient de partition du plomb entre les particules du sol et l'eau du sol et la concentration dans le sol racinaire. Ces deux paramètres ont été définis en s'appuyant sur des données spécifiques au site. Le troisième est la masse volumique des feuilles. Une valeur par défaut de 820 mg/kg frais est utilisée dans le modèle. Mais cette valeur n'apparaît pas cohérente avec les teneurs en eau mesurées dans les végétaux analysées sur site. A partir de la teneur moyenne mesurée en eau dans les végétaux (0,91) et de l'hypothèse d'une fraction volumique d'eau de 0,5 dans les feuilles (hypothèse fournie par défaut dans le modèle CalTOX), une masse volumique de 550 mg/kg est calculée ($0,5 \times 1000 / 0,91$), ce qui reste en accord avec les valeurs classiquement utilisées par les modélisateurs et comprises entre 500 et 900 mg/kg (Paterson *et al.*, 1991; Riederer, 1990; Bacci, 1992, Trapp *et al.*, 1994, Larcher, 1995, Maccrady *et al.*, 1995).

Après correction de la masse volumique des feuilles, les concentrations estimées pour les végétaux exposés, sont à peu près divisées par deux, sauf dans la partie basse de la distribution et la variance des concentrations estimées dans le sang est réduite (voir figures 4a et 4b, courbe 3 de la publication). En revanche, les distributions pour les concentrations dans l'air, le sol superficiel et les végétaux protégés ne sont pas modifiées.

Par ailleurs, il faut tenir compte du fait que les végétaux analysés ont été lavés alors que CalTOX ne tient pas compte de l'impact du lavage. Ce traitement tend à réduire les concentrations dans les végétaux exposées par réduction de l'apport atmosphérique et de l'apport dû à la remise en suspension de particules à partir du sol. Malheureusement, peu de données permettent de quantifier l'impact du lavage des végétaux. Un calcul montre néanmoins que la prise en compte de ce traitement dans le modèle pourrait contribuer à rapprocher les distributions des concentrations de plomb modélisées et mesurées dans les végétaux exposées et dans le sang.

Néanmoins, dans tous les cas, on peut remarquer que pour des percentiles élevés, la distribution des concentrations modélisées dans le sang tend à dévier de la distribution mesurée. Cette déviation peut être due au fait que dans l'échantillon des enfants testés, ceux consommant le plus de végétaux autoproduits sont ceux qui habitent le plus loin de l'installation industrielle. Ce sont donc ceux qui consomment les végétaux autoproduits les moins contaminés. En autres termes, la surestimation des plombémies est en partie due à l'hypothèse, utilisée par le modèle, de distribution homogène des consommations de végétaux autoproduits dans la population du village.

4.4.2 RESULTATS OBTENUS AVEC LE MODELE B

4.4.2.1 CONCENTRATIONS DANS LES VEGETAUX

Les concentrations de plomb mesurées dans les végétaux prélevés chaque année dans les jardins de quelques particuliers ont été comparées aux concentrations estimées à l'aide de la partie multimédia de la chaîne de modélisation.

Les graphiques suivants présentent cette comparaison pour 5 échantillons de fruits ou légumes-fruits, 81 légumes-feuilles et 24 légumes-racines (cf. Figure 6). Dans 70% des cas, la concentration mesurée est comprise entre le 5^{ème} et le 95^{ème} percentile de la valeur estimée. Dans les 30% restants, la concentration mesurée est presque toujours inférieure au 5^{ème} percentile de la valeur estimée. Les rapports des concentrations mesurées sur les concentrations médianes modélisées sont dans 90% des cas compris entre 0,1 et 10. La moyenne géométrique de ces rapports est égale à 0,5 et ils tendent à diminuer quand la concentration mesurée dans les végétaux diminue. Même si le modèle donne globalement des résultats acceptables par rapport aux mesures⁶, il a donc tendance à surestimer les concentrations dans les végétaux, cette surestimation étant plus importante pour les végétaux peu contaminés.

Bien que le nombre d'échantillons de légumes-racines analysés soit plus faible, la tendance à la surestimation semble également plus fréquente pour les légumes-feuilles (28% des valeurs mesurées inférieures au 5^{ème} percentile de la valeur estimée) que pour les légumes-racines (17% des valeurs mesurées inférieures au 5^{ème} percentile de la valeur estimée). Par ailleurs, l'analyse des résultats montrent que pour 80% des légumes-feuilles qui étaient dits avoir une forme pommée lors de la récolte (salades, certains choux), la concentration mesurée est inférieure au 5^{ème} percentile de la concentration estimée. La surface exposée réduite de ces légumes-feuilles apparaît comme un élément qui favorise la surestimation de leur concentration en plomb par le modèle.

6 Les études d'intercomparaison sur les modèles multimédia présentent des différences de concentrations dans les milieux égales ou supérieures. Ainsi, dans l'étude du cas type, la différence entre la concentration médiane calculée avec le modèle INERIS et CalTOX 4 pour les végétaux exposés est égale à un facteur 11 et l'étude d'intercomparaison menée par l'INERIS (2006) avec une utilisation déterministe classique des modèles a montré des différences de concentrations dans les végétaux allant jusqu'à trois ordres de grandeur.

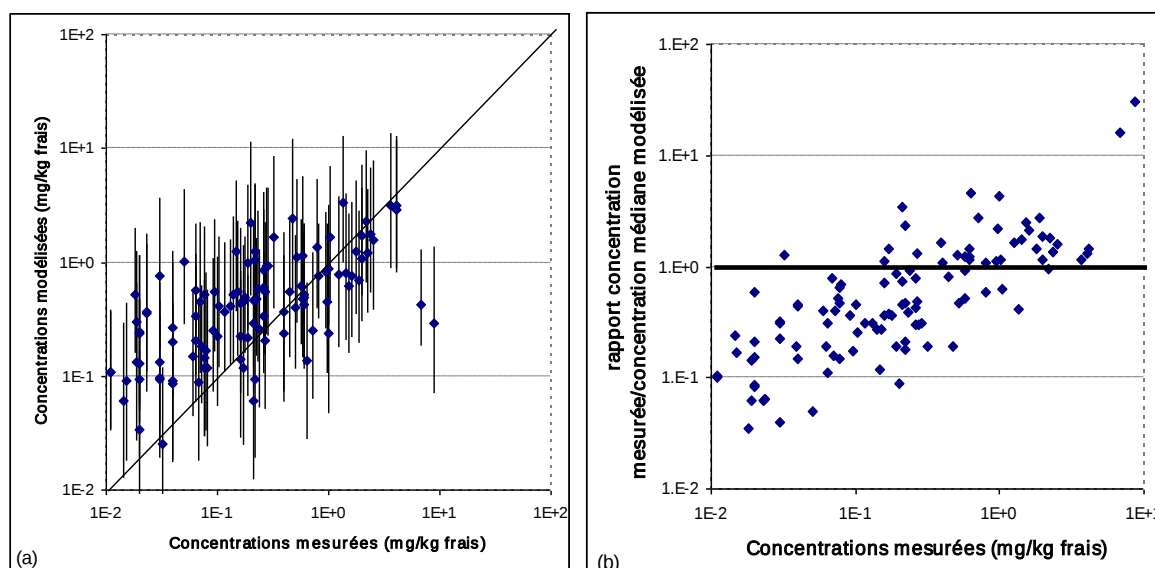


Figure 6 : Comparaison entre les concentrations mesurées et les concentrations modélisées (a : concentrations modélisées par rapport aux concentrations mesurées - les barres d'erreurs représentent l'intervalle de variation à 90% de la concentration estimée, b : rapport des concentrations mesurées sur les concentrations médianes estimées par le modèle)

Il convient de rappeler qu'aucun facteur d'atténuation n'est pris en compte dans la modélisation pour tenir compte du lavage et de la préparation que les échantillons de végétaux ont subi avant analyse. Cette absence de représentation participe vraisemblablement à la surestimation des concentrations par le modèle. A l'inverse, il faut noter que pour les échantillons de feuilles d'arbres collectées et analysées sans lavage préalable, la concentration mesurée est supérieure dans 5 cas sur 9 au 95^{ème} percentile de la valeur modélisée et n'est jamais inférieure au 5^{ème} percentile.

D'autres simulations ont été réalisées en ne prenant pas en compte le dépôt indirect à partir du sol superficiel dans la modélisation. 76 % des valeurs mesurées sont alors comprises entre le 5^{ème} et le 95^{ème} percentile de la valeur estimée. Si le dépôt atmosphérique sur les végétaux est également éliminé, ce pourcentage passe à 87%. Globalement, le modèle incluant les trois phénomènes : transfert par voie racinaire, dépôts atmosphériques directs et indirects, tend donc à surestimer les concentrations de plomb dans les végétaux. Cette surestimation correspond de fait à une approche volontairement protectrice des modèles. Pour cerner l'origine de cette surestimation et améliorer les prédictions du modèle, il serait nécessaire de disposer de données acquises dans des conditions contrôlées (mesure du dépôt direct, couverture du sol pour éviter les projections sur la plante, mesure de la constante de décroissance,...).

4.4.2.2 PLOMBEMIE

Les plombémies ont été modélisées à partir des concentrations de plomb estimées par géostatistique dans les parcelles où vivent les enfants étudiés. Deux méthodes de krigeage ont été utilisées : le krigeage ordinaire et le krigeage avec dérive externe⁷ (voir annexe 2). Les résultats commentés et présentés dans l'article 1 de la section B sont ceux obtenus avec dérive externe.

Sur les neuf enfants considérés dans cet essai, les plombémies mesurées sont comprises dans l'intervalle de confiance à 90 % pour huit d'entre eux (cf. figure 5, article 1, section B). Pour l'enfant 43 dont la plombémie mesurée est nettement supérieure au 95^{ème} percentile de l'estimation, le fait que cet enfant vivait dans une maison construite avant 1948 (date d'interdiction des peintures au plomb) pourrait expliquer cette sous-estimation, puisque la contamination par ingestion de particules de peinture n'a pas été prise en compte dans la modélisation. L'analyse univariée des données de biomonitoring (DDASS, 2002) montre d'ailleurs une moyenne des plombémies plus élevée chez les enfants habitants des maisons construites avant 1948 que chez ceux habitant des maisons plus récentes.

La figure 6 de l'article cité ci-dessus montre que pour des enfants éloignés de l'usine et ayant une forte autoconsommation de fruits et légumes, c'est l'ingestion de ces produits qui contribue le plus à l'exposition, alors que pour des enfants habitant à plus faible distance, mais ne consommant pas de produits locaux, les principales voies d'exposition sont l'ingestion de sol et l'alimentation générale.

Le rapport de la valeur mesurée sur la médiane estimée est compris entre 0,7 et 3 (valeur correspondant à l'enfant 43) selon les enfants. En excluant le cas de l'enfant 43, la moyenne géométrique de ces rapports est égal à 1,1 (la moyenne géométrique est la même lorsque les concentrations dans les sols sont estimées par krigeage ordinaire). Le modèle tend donc ici à légèrement sous-estimer les plombémies, alors que la surestimation des concentrations dans les végétaux (voir paragraphe précédent) devrait, elle, conduire à l'estimation de plombémies pour les gros consommateurs de produits locaux plus élevées que celles mesurées.

Par ailleurs, des essais de calculs préliminaires réalisés avec ce modèle ont montré qu'il était préférable d'estimer la plombémie en utilisant une distribution pour la quantité de sol ingérée par les enfants centrée sur la valeur de 135 mg/j (US EPA, 1999), plutôt que d'utiliser les distributions spécifiques proposées par Thompson *et al.* ou Stanek *et al.* En effet, le modèle IEUBK ayant été calé avec cette valeur, l'utilisation de ces autres distributions, présentant des moyennes nettement plus faibles, tend à introduire un biais supplémentaire de sous-estimation par rapport aux mesures.

Bien que le modèle ait été testé dans des conditions contrastées, le faible nombre de cas traités ne permet pas de conclure sur ses capacités prédictives, ni d'améliorer davantage le calage du modèle. Là encore, il serait nécessaire de disposer de données plus précises, en particulier sur la localisation des différents enfants.

⁷ Prise en compte des dépôts modélisés à partir des émissions canalisées pour les concentrations superficielles dans le sol et prise en compte des concentrations estimées dans le sol superficiel pour les concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur

Concernant la précision des valeurs estimées, les différences entre le 95^{ème} percentile et le 5^{ème} percentile sont comprises entre 25 et 120 µg/l selon les enfants. L'intervalle de variation le plus large est obtenu pour l'enfant 28 et la zone 11. Le paramètre contribuant alors le plus à la variance est la concentration dans la couche de sol racinaire. Le manque de prélèvements de sol dans la zone correspondante conduit en effet à une estimation de la concentration dans le sol imprécise. Lorsque les concentrations dans le sol sont estimées par krigeage ordinaire, sans exploitation de données complémentaires, l'imprécision s'accroît avec une différence entre le 95^{ème} percentile et le 5^{ème} percentile égale à 180 µg/l pour l'enfant 28 et la zone 11.

4.4.3 COMPARAISON DES RESULTATS FOURNIS PAR LES DEUX MODELES

Les deux modèles utilisent des approches différentes et répondent à des objectifs différents :

- ♦ le modèle A permet d'estimer les distributions de concentrations attendues dans les milieux à une échelle locale (dans cet exemple, à l'échelle du village, chaque milieu est caractérisé par une concentration, mais sans précision sur la concentration en un point particulier du village), et de mettre en évidence les modes d'exposition (voie et milieux) prépondérants ;
- ♦ le modèle B cherche à estimer les concentrations en des lieux précis (en distinguant des points de coordonnées différentes dans le village), pour des scénarios d'exposition spécifiques. Il permet ainsi d'apporter des éléments de réponse à des questions souvent formulées pour la réhabilitation de sols pollués comme « dans quelles zones ou à partir de quelle distance, la consommation de légumes autoproduits peut-elle poser un problème sanitaire ? »

Mais, les deux modèles fournissent bien des résultats concordants, puisque d'après le modèle A, les plombémies les plus élevées sont liées à l'ingestion de fruits et légumes autoproduits sur Bourg-Fidèle, tandis que le modèle B montre que les gros consommateurs de fruits et légumes (comme l'enfant 28) sont parmi ceux ayant les plombémies les plus élevées. Il convient toutefois de remarquer que le modèle B, par sa capacité à distinguer différentes conditions d'exposition à une échelle locale, permet d'obtenir des résultats avec une variance plus faible que le modèle A. Ce point constitue une caractéristique importante pour discriminer les situations requérant des mesures de gestion, de celles où elles sont inutiles, en particulier dans un contexte où, comme pour le plomb, le critère sanitaire, s'il est retenu comme seuil d'intervention, est relativement faible (100 µg de plomb par litre de sang).

5 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette étude a nécessité un travail préparatoire important en termes d'acquisition de données, de traitement de ces données et de mise en place des outils de modélisation.

Dans le cadre de ce travail, la méthode de mesure du plomb dans les sols par XRF a été testée et ses performances ont pu être comparées à la méthode de mesure de référence basée sur l'échantillonnage et l'analyse par ICP/OES. Les deux techniques d'analyse appliquées sur les mêmes échantillons ont donné des résultats très proches. La mesure *in situ* par XRF s'est révélée être une méthode de substitution rapide et intéressante, même si les différences de résultats sont dans ce cas plus fortes, compte-tenu de la différence du volume de sol mis en jeu et investigué par les deux méthodes de mesure et de la variabilité spatiale des concentrations de plomb pouvant exister à cette échelle.

Des méthodes géostatistiques ont été mises en œuvre pour obtenir une cartographie de la concentration de plomb dans le sol superficiel et dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm. Le krigeage avec dérive externe a permis de réduire les incertitudes d'estimation sur les concentrations de plomb dans les sols.

Un travail de recodage du modèle biocinétique IEUBK a été réalisé permettant une utilisation plus souple (apport de plomb à la cible variable en fonction du temps et visualisation de l'évolution de la plombémie avec un pas de temps mensuel) dans un cadre probabiliste.

Des distributions statistiques ont été définies et documentées pour chacun des paramètres d'entrée des modèles multimédia utilisés. Une revue bibliographique et un travail d'analyse approfondie ont permis de définir des distributions mieux étayées pour les coefficients de transfert du plomb.

Ce travail sur les distributions statistiques des paramètres d'entrée a déjà pu être valorisés dans le cadre de prestations commerciales (Bonnard, De Saint-Jores, 2007).

La comparaison des chaînes de modélisation sur le cas type a apporté un certain nombre d'enseignements :

- ♦ elle a montré que les résultats obtenus peuvent être sensiblement différents en valeur absolue (jusqu'à un ordre de grandeur sur la valeur médiane de la dose totale d'exposition), mais surtout que le degré de précision des variables de sortie est très différent selon le modèle multimédia utilisé. L'incertitude (au sens large) paramétrique des résultats obtenus avec les différentes versions de CalTOX est ainsi beaucoup plus élevée que celle entourant les résultats fournis par le modèle INERIS et le modèle HHRAP. Dans ces conditions, la probabilité de dépasser une valeur limite donnée est très variable selon le modèle multimédia utilisé. Dans certains cas, un travail de définition plus précis des paramètres contribuant le plus à la variance (et identifié par l'analyse de sensibilité) peut réduire cette incertitude. Pour CalTOX 4, qui dans l'exercice de comparaison menée sur le cas type, a donné pour les variables de sortie les distributions les plus larges, il paraît difficile de réduire de manière significative cette incertitude sur les résultats. Or, des résultats avec une forte

incertitude présentent souvent un intérêt limité pour la prise de décision. En l'absence d'autres éléments scientifiques permettant de privilégier un modèle plutôt qu'un autre (reconnaissance des bases scientifiques sur lequel repose le modèle, acquisition d'éléments permettant de juger de la qualité d'approximation du modèle), il est préférable d'utiliser un modèle, qui renseigné avec des valeurs adaptées au cas à traiter, présente une incertitude paramétrique plus faible ;

- ✦ Des différences importantes ont également été mises en évidence dans la définition des voies et des milieux environnementaux contribuant le plus à l'exposition en approche probabiliste par rapport à l'approche déterministe. Le fait d'utiliser une approche dite « raisonnablement majorante » avec les valeurs maximales relevées pour les coefficients de transfert crée des distorsions de résultats et des erreurs d'interprétation dans les voies d'exposition prépondérantes. Cette pratique est pourtant habituelle. Elle est classiquement utilisée à l'INERIS dans le cadre des ERS pour les ICPE et des évaluations détaillées des Risques (EDR) pour les sols pollués. Elle est aussi appliquée par les bureaux d'études et recommandée lors des tierces-expertises. En l'absence d'un travail de fond sur les valeurs de ces paramètres qui peuvent être très variables et incertains, et d'éléments sur les facteurs pouvant influencer la valeur du paramètre (nature du sol, pH), cette approche vise à éviter de sous-estimer l'exposition et donc le risque. Si cette approche volontairement majorante permet de vérifier que la situation étudiée ne présente pas de risque inacceptable, en revanche elle n'est pas adaptée à l'élaboration d'un plan de surveillance des milieux environnementaux autour d'une ICPE ou de mesures de gestion pour un site pollué, qui repose davantage sur l'appréciation des voies d'exposition et des modes de transfert préférentiels de la pollution. Pour une interprétation correcte des parts relatives des différentes voies et des différentes modes de transfert dans l'exposition, il est alors préférable de s'appuyer sur les valeurs de paramètres les plus probables (c'est-à-dire sur les valeurs modales). En fonction de l'objectif recherché, faute d'utiliser une approche probabiliste, plusieurs estimations ponctuelles peuvent donc être réalisées. Le plus souvent, le paramétrage d'une approche la plus réaliste possible et d'une seconde approche majorante et protectrice s'avère nécessaire ;
- ✦ Par ailleurs, dans ces travaux sur le cas type, les estimations déterministes obtenues pour les niveaux d'exposition correspondaient à des percentiles élevés des distributions de la variable de sortie obtenue avec l'approche probabiliste. Pourtant, dans certains cas, l'estimation déterministe peut correspondre à un percentile sensiblement plus faible (cf. l'estimation de l'exposition à partir du flux canalisé maximal autorisé dans l'annexe 6). Même si certains, voire de nombreux paramètres utilisés pour la modélisation sont affectés d'une valeur majorante, il suffit qu'un paramètre ayant un effet particulièrement sensible sur la variable de sortie soit défini par une valeur ponctuelle décalée vers la gauche de sa distribution, pour que le résultat déterministe se trouve lui aussi décalé vers la gauche de la courbe de distribution obtenue par calcul probabiliste et qu'il ne puisse plus être considéré comme protecteur. Sans connaissance des paramètres les plus sensibles, la réalisation de calculs en mode déterministe selon l'approche actuelle visant à utiliser des valeurs majorantes pour certains paramètres et

des valeurs plus « réalistes » pour d'autres, conduit à l'obtention de résultats dont le degré de « prudence » ou le « caractère protecteur » est en fait inconnu. Le degré de prudence affectant les résultats est aussi variable d'une étude à une autre, ce qui entraîne un manque de consistance et de comparabilité entre ces études. Pour y remédier, il faut connaître la sensibilité du modèle aux différents paramètres, pour focaliser l'effort de définition des valeurs sur les paramètres sensibles et attribuer à ceux-ci des valeurs adaptées en fonction de l'objectif recherché. La difficulté réside alors dans l'identification de ces paramètres sensibles qui peuvent varier selon les scénarios et les substances traitées. La réalisation d'analyses de sensibilité à partir d'une série de cas peut être une solution pour constituer des listes de référence de paramètres sensibles en fonction du type de scénarios et du comportement des substances (polluants volatils, semi-volatils, persistant, lipophiles,...) et favoriser ainsi la réalisation d'évaluations de risques déterministes plus cohérentes et informatives quant au degré de prudence associé à l'estimation, sans qu'il soit nécessaire de mener de manière systématique une analyse de sensibilité au préalable.

Quant au travail de comparaison mesures-modèles, il a montré que lorsque l'ensemble des émissions de l'installation de seconde fusion de plomb étudiée était pris en compte, les concentrations environnementales et les niveaux de plombémie modélisés étaient cohérents avec les valeurs mesurées. Il a permis d'illustrer l'importance de l'analyse de sensibilité et des contributions pour identifier les paramètres dont les valeurs doivent être mieux définies pour réduire l'incertitude et améliorer les prévisions des modèles.

Même si la chaîne de modélisation basée sur le modèle INERIS mériterait d'être testée sur un plus grand nombre de cas, pour lesquels il serait possible de relier chaque plombémie aux conditions d'exposition de l'enfant concerné, l'ensemble de ce travail de comparaison mesures-modèles contribue à augmenter la connaissance de ces modèles et la confiance que l'on peut accorder aux résultats obtenus par leur intermédiaire.

Enfin, le travail de comparaison des chaînes de modélisation et celui de comparaison avec les mesures a permis d'identifier la modélisation de la contamination des végétaux comme un axe d'étude prioritaire. Depuis, une étude menée avec l'ADEME a fourni l'occasion de comparer les concentrations modélisées et mesurées de 48 lots de salades et de ray-grass exposés à des émissions de métaux et de dioxines. Un autre projet en cours, mené avec l'Ecole Nationale Supérieure d'Agronomie de Toulouse, va permettre de réaliser le même travail sur 50 lots de salades cultivées en pots et exposées aux retombées d'une usine de seconde fusion de plomb. Des analyses spécifiques réalisées à différents pas de temps au cours des cultures permettront d'estimer les paramètres relatifs au végétal étudié pour améliorer le modèle.

6 COLLABORATIONS

Roseline BONNARD a effectué un séjour de deux mois au Lawrence Berkeley National Laboratory, dans la division Environmental Energy Technologies, au sein de l'équipe « Indoor Air » dirigée par Thomas McKone. Thomas McKone, chercheur et professeur à l'école de Santé Publique de l'Université de Berkeley est le principal artisan du modèle CalTOX.

Pendant ce séjour, Roseline BONNARD a travaillé sur la comparaison des mesures de plomb dans les différents milieux avec les résultats fournis par les chaînes de modélisation « CalTOX + IEUBK recodé » d'une part et « modèle statistique de dépôts au sol + modèle multimédia INERIS + IEUBK recodé » d'autre part.

Cette collaboration a permis de mieux connaître les hypothèses de base prises en compte dans CalTOX, d'enrichir la réflexion sur la problématique de l'évaluation des modèles et d'acquérir une expérience sur les techniques utilisables pour comparer les résultats de mesures avec ceux fournis par les modèles.

7 REFERENCES CITEES

ANTEA, Société Métal-Blanc à Bourg-Fidèle, Diagnostic approfondi de l'usine et des abords, n°A 13606/A, 1999 a

ANTEA, Société Métal-Blanc à Bourg-Fidèle, Compléments au diagnostic approfondi, n°A 17453/A, 1999 b

ANTEA, Métal-Blanc, Usine de Bourg-Fidèle (Ardennes), Evaluation détaillée des risques, n°A 19846/D, 2000

Bacci E., Cerejeira M. J., Gaggi C., Vighi M. (1992). Chlorinated dioxins – Volatilization from soils and bioconcentration in plant leaves. Bulletin of environmental contamination and toxicology , 48, 401-408

Bonnard R., De Saint-Jores, Etude de dispersion atmosphérique et analyse de sensibilité des concentrations de PCDD/PCDF dans les milieux s'exposition, DRC_07_88854_15002A, 2007

CERC (Cambridge Environmental Research Consultants), ADMS 3. User Guide. Sept 2001

CTSEE (Comité Scientifique de Toxicité, d'Ecotoxicité et de l'Environnement), Opinion on the available scientific approaches to assess the potential effects and risks of chemical on terrestrial ecosystems. Scientific Committee on Toxicity, Ecotoxicity and the Environment, Health & Consumer Protection Directorate, European Commission, report C2/JCD/cteeop/ter 91100/D(0)

CTSEE (Comité Scientifique de Toxicité, d'Ecotoxicité et de l'Environnement), Exposure data in risk assessment of organic chemicals, Scientific Committee Ecotoxicity and the Environment, Health & Consumer Protection Directorate, European Commission, report C2/JCD/cteeop/ExpAssess20072001/D(01)

DDASS des Ardennes, Enquête environnementale saturnisme, Rapport d'enquête au domicile des familles, 1998

DDASS des Ardennes, Evaluation de l'exposition des enfants aux polluants émis par l'usine Métal Blanc à Bourg-Fidèle, Dépistage des imprégnations saturnines excessives et estimations des imprégnations par l'arsenic et le cadmium, 1999

Decisoneering, Crystal Ball 2000, Standard edition

Decisoneering, Crystal Ball 7.2, Professional Edition, 2005

Declercq C., Ladrière L., Programme de dépistage du saturnisme infantile dans 9 communes du Nord et du Pas de Calais, CLIS Métaleurop, 29 Septembre 2004

Durrieu, Cifroy, Garnier, Chemosphere, Nov. 65(8), 2006

DRASS de Lorraine, CIRE Est, DDASS des Ardennes, InVS, Schmitt M., Deshayes F., Fradet M.R., Coquet S., Brun N., Humbert B., Nouvelle enquête sur l'imprégnation saturnine des enfants de Bourg-Fidèle, 2002

GCNC, Groupe Chimique Nord-Cotentin, Impact des rejets chimiques, Vol. 2, Rapport détaillé, Evaluation des risques pour la santé humaine associé aux rejets chimiques des installations nucléaires du Nord-Cotentin, 2002

GRNC, Groupe Radioécologique Nord-Cotentin, Analyse de sensibilité et d'incertitude sur le risque de leucémie attribuable aux installations nucléaires du Nord-Cotentin, 2002

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Note au sujet des résultats d'analyse de végétaux prélevés dans le voisinage de l'usine Métal Blanc à Bourg-Fidèle, 2000

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements du 17 Juillet 2001, 2002 a

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, campagne 2002 b

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements du 16 Juillet 2003, 2004

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements 2004, 2005

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Malherbe L., Fiche technique du logiciel scientifique ADMS, DI0771

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Paramètres physico-chimiques et coefficients de transfert des dioxines pour l'évaluation des risques, 2004, DRC-03-45959/ERSA-n°272

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Impact des incertitudes liées aux coefficients de transfert dans les évaluations de risque sanitaire, DRC/ERSA/RBn, 2005, 67645/204

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Etude d'intercomparaison de modèles multimédia, DRC/ERSA/RBn, 2006, 45959/25

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Le logiciel de calcul CalTOX 4.0, DRC-07-86835-16788A, 2007

ISIGE (Institut Supérieur d'Ingénierie et de Gestion de l'Environnement), Coineau D., Amélioration des méthodes d'estimation prospective de l'exposition aux polluants des populations résidant autour d'une ICPE, Etude pilote : le cas du plomb, Etude préliminaire mission professionnelle, 2002

LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory), CalTOX, A multimedia total exposure model spreadsheet user's guide, McKone, Enoch, 2002

Maccrady J.K., Maggard S.P. (1995). Uptake and photodegradation of 2,3,7,8 tetrachlorodibenzo-dioxins sorbed to grass foliage. Environmental science and technology, 27, 343-350

Ministère de l'Environnement, Loi n°96-1236 du 30 décembre 1996 sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie, Journal Officiel de la République Française du 1er janvier 1997, Paris, France

Ministère de l'Environnement, DPPR (Direction de la Prévention des pollutions et des Risques), circulaire DPPR/SEI/BPSE/EN/CD/10 n° 00-317 du 19 juin 2000

Morra P., Bagli S., Spadoni G., The analysis of human health risk with a detailed procedure operating in a GIS environment, *Environment international*, Vol. 32, 2006

McKone T., Bennett D., Chemical-specific representation of air-soil exchange and soil penetration in regional multimedia models, *Environmental Science and Technology*, vol. 37, 2003

Oberg T., Bergbäck B., A review of probabilistic risk assessment of contaminated land, *Journal of soils and sediments*, Vol. 5 (4), 2005

OMS, Guidelines for drinking-water quality. Health criteria and other supporting information. Geneva, World Health Organization, Vol. 1, 2nd ed.

Paterson S.D., Mackay D., Gladman A. (1991). A fugacity model of chemical uptake by plants from soil and air. *Chemosphere*, 23: 539-565

Riederer M.(1990). Estimating partitioning and transport of organic chemicals in the foliage atmosphere system, *Environmental science and Technology*, 24, 829-837

Sander P., Oberg T., Comparing deterministic and probabilistic risk assessments, A case study at a close steel mill in southern Sweden, *Journal of soils and sediments*, Vol. 6 (1), 2006

Schuhmacher M., Montse M., Xifro A., Domingo J., The use of Monte-Carlo simulation techniques for risk assessment: study of a municipal waste incinerator, *Chemosphere*, Vol. 43, 2001

Schwartz, Quality assurance of exposure models for environmental risk assessment of substances, Doctorat thesis, Institute of Environmental Systems Research, University of Osnabrück, 2000

University of California, CALTOX, a multimedia total exposure model for hazardous-waste sites : The Department of Toxic Substances control (DTSC), 1993

University of California, CALTOX version 2.3, Description of modifications and revisions. Berkeley : The Department of Toxic Substances control (DTSC), 1997

US DOe (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Wasiolek M., Environmental transport input parameters for the biosphere model, ANL-MGR-MD-000007 REV 01, 2003

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Guidance manual for the IEUBK model for lead in children, report PB93-963510, 1994 a

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Technical support document: Parameters and equations used in the integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children (v0.99d), report PB94-963505, 1994 b

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: IEUBK model soil/dust ingestion rates, EPA #540-F-00-007, 1999

US EPA (US Environmental Protection Agency), Risk assessment guidance for Superfund, Volume III - Part A, Process for conducting probabilistic risk assessment (RAGS 3A), report EPA 540-R-02-002, 2001, <http://www.epa.gov/oswer/riskassessment/rags3adt>

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste, Human Health Risk Assessment Protocol for hazardous waste combustion facilities (HHRAP), report EPA/530/R-05-006, 2005

Trapp S., McFarlane J. (1994). Plant contamination: modelling and simulation of organic chemical processes, 254 p., ISBN 1566 700 787.

SECTION B : PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES

Communications écrites

Bonnard Roseline, Mckone Thomas, Comparison of the predictions of two models with measurements in a case of children exposed to the emissions of a lead smelter (acceptée sous réserve de modifications par la revue Human and Ecological Risk Assessment)

Bonnard Roseline, Bour Olivier, Comparison of lead concentration in surface soil by Inducted Coupled Plasma/Optical Emission Spectrometry and X-Ray Fluorescence, CONSOIL 2008, ITALY

Communications orales

Cardenas Giovanni, Bonnard Roseline, Etude géostatistique de pollution de sols au plomb dans l'agglomération de Bourg-Fidèle (Ardennes), Journée de géostatistique, 27 et 28 Septembre 2007, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris

Posters

Bonnard Roseline, Bour Olivier, Comparison of lead concentration in surface soil by Inducted Coupled Plasma/Optical Emission Spectrometry and X-Ray Fluorescence, CONSOIL 2008, ITALY

Cardenas Giovanni, Bonnard Roseline, Geostatistical study of the lead concentration in a French village, VIII International Geostatistics Congress (GEOSTATS 2008), CHILI

Comparison of the predictions of two models with dose measurements in a case of children exposed to the emissions of a lead smelter

R. Bonnard, T. McKone

ABSTRACT

The predictions of two source-to-dose models are compared to observed data collected in a village polluted by a currently operating secondary lead smelter. Both models were built up from several sub-models linked together and run using Monte-Carlo simulation, to calculate the distribution children's blood lead attributable to the emissions from the facility. The first model system is composed of the CalTOX model linked to a recoded version of the IEUBK model. This system provides the distribution of the media-specific lead concentrations (air, soil, fruit, vegetables and blood) in the whole area investigated. The second model consists of a statistical model to estimate the lead deposition on the ground, a multimedia model and the same recoded version of the IEUBK model. This system provides an estimate of the exposure level of specific individuals living in the study area. Overall, both models yield results that are consistent with observations. The predictions of the first model system were improved in terms of accuracy and precision owing to the results of the sensitivity analysis and by using field data to correct the default value provided for the leaf wet density. From a sub-sample of children tested, the second model system manages to capture the blood levels for contrasting exposure conditions, except in the case of a child exposed through pathways not considered in the model.

Keywords : Exposure assessment, multimedia models, probabilistic risk assessment, lead, IEUBK.

INTRODUCTION

Exposure models for chemicals are used around the world to assess the human health risks and to support regulatory decision making. For example, they are used to support policies for pollution control⁽¹⁾ such as the Hot Spots Program of California Environmental Protection Agency⁽²⁾, in which the risks linked to atmospheric emissions from existing facilities are estimated. They are also used in France for Registered Installations for Protection of the Environment⁽³⁾, which requires a human health risk assessment study to be performed and included in all the environmental impact analyses for new or modified facilities. Exposure models are also employed to estimate the risks linked to manufactured substances, as required by the European regulation for new and existing substances^(4, 5). Many countries define safety limits with models for various exposure media such as food, water and air^(6, 7) and national regulations), as well for soils, for which human health risk assessment is used to identify, prioritise and assess the need for remedial actions^(8, 9).

Because of the critical role played by models, scientists are required to show that their predictions are reliable. Even though a “model can never be truly validated, (but only invalidated)”^(10, 11), it is still necessary to evaluate its fitness for use. Part of this process is checking if models yield results matching the observations from field studies, and for the right reasons (that is by providing the correct cause-effect relationships between input and output) and capture this link with a sufficient level of precision.

In the context of facilities and contaminated soils, health risk assessment studies employ multimedia exposure models to predict contaminations at a local scale and sometimes employ physiologically based pharmacokinetic (PBPK) models, when the exposure levels need to be expressed in terms of internal doses, as for lead, whose sanitary threshold value is usually fixed at 100 µg/l in blood for children.

A number of different multimedia models have undergone empirical evaluation in the last decade, but these exercises were carried out at regional or continental scales⁽¹²⁾ and most of the time, they were limited to environmental concentrations⁽¹³⁻¹⁵⁾. In the case of the PBPK models, results have been evaluated by dosing of subjects in controlled conditions from the administrated doses or the concentrations measured^(16, 17). Because of the difficulties in collecting for the same period and the same location sufficient data for the source emissions, environmental concentrations, activity patterns, biomonitoring data, and reconstructing past exposures, predictions of multimedia models have seldom been compared with biomonitoring data from the source of contamination. Such an analysis was conducted in a case of contaminated soils by polycyclic aromatic hydrocarbons⁽¹⁸⁾, where urinary 1-hydroxypyren data collected from workers were compared to the levels predicted by several multimedia models. That study showed discrepancies among the models tested, in terms of magnitude of the output and of predominant exposure pathways. However, the authors carried out comparisons using a deterministic approach with a point estimate obtained from the different models. Because they did not know the precision of those point estimates, they could not determine to what extent these point estimates were truly different or even comparable.

The goal of this paper is to analyse the performance (accuracy and precision) of two source-to-dose modeling approaches, for a contaminated site by a secondary-lead smelter. Lead contamination was selected because lead is a contaminant often considered in health risk assessments for industrial sites. At such sites, lead can be found in various exposure media, a situation that requires consideration of multiple exposure pathways and provides the opportunity to assess exposure levels both by modelling and measuring blood lead. The comparison of lead measurements and lead modelling results can be carried out at several levels : first in environmental media (such as air or soil), second in exposure media (such as vegetables) and lastly in the human body. The intermediate points of comparison help to determine at which level discrepancies may appear between models and observations and whether the final results are correct for the right reasons.

METHODS

The lead smelter is located in a French village. The local authorities have ordered many investigations in this village and have implemented a control of the environment media concentrations for several years. The data available were

collected in order to carry out the model evaluations and several campaigns of measurements were performed to complete the dataset.

Two source-to-dose models, built-up from existing sub-models, were used for this study and run simultaneously by Monte-Carlo sampling from the ranges of parameter input values.

The data related to the site and the models used are presented in the following subsections. The data not shown (measurement data and input parameters of the models) are detailed in a report that can be provided upon request⁽¹⁹⁾.

STUDY VILLAGE AND LEAD EMISSIONS

The village has about 800 inhabitants. The facility producing lead began operations in this village in 1970 and recycled lead from engine-batteries. In relation to the facility, houses are located in a sector between the north-north-east axis to the south-west axis, with the major portion of them been located between the north-east and the south-east axes (figure 1). The distance from the facility stacks ranges from 100 meters to 1 km. Currently, this smelter is the only facility in the village emitting lead in the atmosphere. From 2000 to the end of 2001, several measures were implemented to reduce the contamination linked to its activity. These measures resulted in a significant reduction of the atmospheric emissions of lead.

CHILD BIOMONITORING DATA AND EXPOSURE SURVEY

A biomonitoring campaigns for children's blood lead was carried out in this village in 2002 by the local health administration. A questionnaire was filled out for each child at that sampling time to collect information on his or her exposure conditions. The questionnaire documented age, residence time in the village, places frequented, age of the home, proportion of fruit and vegetables consumed from the family garden, type of water (tap or bottled) consumed, and parents' place of work.

To protect the confidentiality of the children, we were not able to obtain the exact location of the house where each child dwelled. Only the distance to the facility was provided, with an indicator, going from 1 to 3, expressing the propensity of the wind blowing from the facility towards the child's house. In addition, the local administration provided us with a map indicating three different sectors assigned a wind propensity value equal to 1, three others a value of 2, and two sectors a value of 3 (figure 1).

Among all the children likely to be exposed, 67% took part into the study, namely 97 children. Among them, 19 had parents working in the facility. Because the local sanitary authorities have demonstrated a positive link between the children's blood lead and the parents working in the facility⁽²⁰⁾ and since no multimedia exposure model is currently able to take into account such a relationship, we only kept the lead blood data from the 78 children whose parents did not work in the facility.

ENVIRONMENTAL MEDIA MEASUREMENTS

AIR CONCENTRATIONS

Daily air concentration data are collected from ATMO Champagne⁽²¹⁾, a public association in charge of monitoring the air quality. An air sampler was placed in the village at 120 meters from the facility stacks. It is represented by a white cross on figure 1. Air concentrations were measured by atomic absorption spectrometry according the procedure NF X43-026⁽²²⁾.

PLANT CONCENTRATIONS

A monitoring program has been conducted by a private company. Each year, it consists of the collection of about 30 samples of plants (fruit, vegetables and leaves of trees), from 6 or 7 volunteers' gardens, located between 80 to 600 meters from the facility. All the samples are prepared and washed before being analysed, except the leaves of the trees⁽²³⁾.

DEPOSITION TO THE GROUND SURFACE

A campaign was conducted to measure monthly lead deposition on the ground at 15 locations in the village, using Owen gauges⁽²⁴⁾. These measurements were made in October and November 2005. One duplicate device was used to check the reproducibility and 7 of the samples collected were distributed on the North-East axis relating to the facility, which corresponds to the preferential wind direction. The results showed a clear decreasing level of deposition with the distance.

SOIL CONCENTRATIONS

Several campaigns of soil lead concentration measurements have been performed in village since 1998. However, because of the location and the depth of the samples, few data could be considered as representative of the population exposure. Therefore, we carried out two additional campaigns of measurements in the summer of 2006. The first consisted of 48 surface soil samples and 12 samples taken from the first 20 centimeters. All were composite samples assembled by mixing five sub-samples from the same area. The samples were not distributed according to a regular grid but taken in the village from locations close to dwellings and chosen according to accessibility. The surface samples were collected in open areas and in the inhabitants' gardens, where the soil had not been disturbed and all the first-twenty-centimeter samples came from the inhabitants' kitchen gardens. The soils were analysed by inductively coupled plasma optical emission spectrometry (ICP/OES) according to the European standard analytical method^(25, 26). The second campaign consisted of in-situ measurements made with a portable X-ray fluorescence device. Measurements were performed at 133 locations. To check the correlation of results between the two methods, some of the fluorescence measurements were made at the location where soil surface analytical samples were collected and 24 additional measurements by X-ray fluorescence were performed on soil samples prepared at the laboratory for extraction before ICP/OES analysis. For measurements of lead in the first twenty centimeters of soil, the appropriate data collected from former campaigns, as well as those from the monitoring program on the vegetables cultivated by the inhabitants, were added to our own dataset. Through this process, a geostatistical study with a set of 156 data was achieved corresponding to the lead concentration in the surface soil and with a set of 39 data related to the first twenty centimeter soil samples.

Lead is characterized by a low mobility in soils and tends to accumulate in the surface layers⁽²⁷⁻²⁹⁾. However, even if the quantities of lead collected in each gauge during our two-month-measurement campaign (while the stack emissions were higher than the 2002 to 2006 average ones) had been deposited on the ground for four years (between 2002 and 2006) and had not moved, that deposition of lead would correspond to an increase of the concentration in the first two centimeter layer of less than 5%. Given this low accumulation rate, we assumed that the values measured in the soils in 2006 are representative of the concentrations in 2002. Subject to the condition that no other source was added to the soils and the surface soil was not mixed with other soil layers, this assumption seems reasonable.

SOURCE TO DOSE MODELLING

ATMOSPHERIC EMISSION ESTIMATES

Atmospheric emissions from the smelter appear to come from both stack and fugitive emissions. We estimate smelter stack emissions from monthly sampling of particulate emissions, the measurement of the lead concentration in the emitted particles and the duration of operation. The smelter operators try to limit the fugitive emissions by keeping the pressure inside the buildings lower than the outside pressure, washing outdoor surfaces daily and stocking raw materials products and by-products indoors. Nevertheless, preliminary calculations performed with an air dispersion model⁽³⁰⁾ showed that the air concentrations and particle fallout recorded downwind could not be explained purely by the recorded stack emissions⁽¹⁹⁾. Therefore, we had to include fugitive emissions. We estimated them using three methods (inverse modelling, predictions based on the emission factors and the production rate, and a calculation based on the indoor air concentration in the buildings of the factory and the ventilation rate) and checking the similarity of results from the three methods.

DESCRIPTION OF INTEGRATED MODEL A

Model A consists of the CalTOX multimedia fate and multi-pathway exposure model^(31, 32) integrated with the exposure-uptake-biokinetic (IEUBK) model⁽³³⁾. We set up this model system in Excel© files, and ran probabilistic assessments with the software Crystal Ball⁽³⁴⁾.

CalTOX is a fugacity-based mass balance model in which each environmental medium (air, soil, water, etc) is represented by a homogeneous compartment. IEUBK is the model recommended by the United States Environmental Protection Agency (US EPA) to estimate children's blood lead exposure. It permits calculation of the lead intake and uptake from the exposure media concentrations and then determines the blood lead levels using a biokinetic sub-model. To address the inability of IEUBK to propagate uncertainty and variability from lead intake, Syracuse Research Corporation developed the Integrated Stochastic Exposure (ISE) model⁽³⁵⁾ using the same conceptual model as IEUBK but allowing for stochastic simulations. We did the same, by developing our own version of IEUBK using Excel© and Visual Basic, so that we could link it directly to the stochastic outputs of CalTOX. We checked that our implementation of IEUBK gives exactly the same results as the original code. With this approach our blood lead prediction model could consider temporal variation of lead intake and probabilistic distributions for some inputs defined as point estimates in the ISE model. In model A, media concentrations were used directly as input data in IEUBK when IEUBK could use them, or converted to administrated doses otherwise. We accounted for intake of lead through inhalation, soil ingestion, ingestion of local fruits and vegetables, and background exposure from other sources, mainly non-local food consumption⁽³⁶⁾.

Based on atmospheric emissions and the distribution of lead concentrations measured in the first twenty centimeters of soil, model A was used with Crystal Ball to characterize the distributions of lead in the village air, in the surface soil, in the above-ground fruits and vegetables and the below-ground vegetables grown in the village, and finally in the blood of the children of the village.

DESCRIPTION OF INTEGRATED MODEL B

Model B was built to estimate lead exposures for precise locations, an approach often required for contaminated sites to distinguish the areas requiring remediation from those which do not. Unlike model A, which we used to capture the distribution of the concentrations over the whole village, model B was designed to represent the exposure of individuals. Because the exact location of each child's house was not known, we had to guess it based on the concordance among three sources of information: (1) the child's distance from the facility, (2) the sector where the house was located and (3) a bird's-eye view zonal map of the village. In some cases, only one location of household corresponded to information derived from these three sources, in other there were two or more possibilities. Blood lead level was modelled only for children with contrasting exposure conditions (high, low or no consumption of home-grown vegetables, close or far from the facility, low or high blood lead level) and with one or two possible housing locations (see Table I). In the latter case, two predictions were made for blood lead with the linked models.

Model B has three components: (1) a statistical model that calculates lead deposition according to the location of the household in the village, (2) a multimedia exposure model that calculates local lead concentrations in environmental and exposure media based on the deposition rate, the surface soil concentration and the soil concentrations in the first twenty centimeters and (3) our version of IEUBK recoded in Excel©.

We use the statistical model in place of a classical gaussian air dispersion model because we found the accuracy of these models, which predict deposition and air concentration, at each point of a grid, to be inappropriate in regards of the estimation of fugitive emissions (see section 2.4.1). Instead we fitted deposition data collected during the sampling campaign (see section 2.3.2) using a statistical relationship, taking into account the distance (D_i in meters) of a specific location i from the facility, the frequency (W_{ij} unitless) of the wind blowing from the facility towards a specific location during month j and the magnitude of stack emissions (E_j in g/month). We used Statistica⁽³⁷⁾ for this analysis. We obtained the higher correlation coefficient and the lower residual standard deviation with the following equation by ordinary least squares:

$$\hat{Y}_{ij} = \log dep_{ij} = 0.35 - 1.7 \times 10^{-3} D_i + 1.31 W_{ij} + 1.4 \times 10^{-5} E_j (\Delta^2 = 0.93) \quad (1)$$

where dep_{ij} = total deposition of lead on the ground at location i during month j (in mg/m²/month)

Although this equation is based on data collected for only two months, all coefficients multiplying E were found to be statistically significant. The residuals of the above equation appeared normal and homoscedastic.

We characterized the uncertainty of the predicted deposition ($\hat{Y}$) using a Student's distribution, with 26 degrees of freedom, multiplied by the estimated deviation of $\hat{Y}$ ⁽³⁸⁾. The output of this relationship along with the error were used as inputs in the multimedia exposure model.

The media concentrations were calculated from the equations described in the Human Health Risk Assessment Protocol (HHRAP) document⁽³⁹⁾. However, a supplemental soil layer (between 0 to 10 cm from the surface) for predicting the forage contamination from soil and additional classes of plants (fruit, leafy vegetables and fruit vegetables) were introduced, as well as equations for plant contamination by irrigation and deposition of resuspended soil particles. The equations used for the two latter pathways are those given in the model ERMYN⁽⁴⁰⁾. The concentrations in air, surface soil and plants yielded by the multimedia exposure model were used in the same way as in model A to obtain the child blood lead distributions.

VALUES USED FOR MODEL PARAMETERS AND INPUTS

Here we describe how we obtained model inputs. First we consider the period for which we had to model the doses adsorbed by children to estimate their blood lead level at the time of the biomonitoring campaign. Next we consider the case of source terms, lead chemical properties, environmental parameters, intake and uptake parameters. We developed probability distributions for each parameter of both models.

Period for reconstructing children's intake

The half-life of lead in blood is estimated to be one month. Although lead is also stocked in bones and slowly released in blood from there, it has been shown that a reduction of child exposure brings out a rather fast reduction of the blood lead⁽⁴¹⁾. The conceptual model implemented in the IEUBK software also yields a rapid reduction of the blood lead, once intake is stopped. We ran the IEUBK model for the case of a child ingesting a dose 3 times higher than the estimated background intake for 3 years and then a dose equal to the background intake⁽³⁶⁾. We found that one year after reducing the intake, the blood lead would be only 2 percent higher than the one calculated with the background intake for 4 years. Therefore, the efforts to reconstruct the intake doses were focused on a period starting from spring 2001 to the date of the campaign of blood lead measurements. Beforehand, the exposure conditions were assumed to be the same as those between January and June 2001.

Source term definition

Model A

A lognormal distribution was fitted to the observed lead concentrations in the first twenty centimeters of soil using a Z-plot chart. The resulting distribution with an arithmetic mean of 261 mg/kg and a standard deviation of 249 mg/kg was assigned to the root zone soil concentration parameter of CalTOX.

Lead emissions were estimated from the data recorded from April 2001 to June 2002 in order to cover the whole growing period of the local fruit and vegetables consumed till the date of the campaign of blood lead measurements. Because information on fugitive emissions is poor (see section 2.4.1) a triangular distribution was assigned to the total atmospheric emissions from the estimates obtained for the stack and the fugitive emissions during this period. The mode is equal to 1,200 g/d, the minimum to 750 g/d and the maximum to 2,800 g/d.

For comparing the predicted vegetation concentrations with the observed ones, the emissions were estimated over the vegetation exposure period to fallout from the facility (from April to July, in 2002 to 2005). The total atmospheric emissions were defined by a triangular distribution with a mode of 780 g/d, a minimum of 450 g/d and a maximum of 1,450 g/d.

Model B

Soil mean concentrations were estimated for the surface soil and for the root zone soil of the location associated with each child's house by kriging. Cumulative distributions were defined for soil mean concentration owing to the turning band method^(19, 42).

The atmospheric emissions were estimated from the statistical model described above (Equation 1) for each location and period used to represent the atmospheric deposition on the different kinds of home-grown plants.

Chemical properties for lead

Model A

With the exception of the particle-water partition coefficients, we used the default distributions provided by CalTOX for chemical properties—water solubility, distribution coefficients, and bioconcentration factors. We found that the particle-water partition coefficient (Kd) in CalTOX was high relative to ranges found in other papers. Since Kd for lead is known to depend on the soil pH, we used the recommendations from the Office of Air and Radiation⁽⁴³⁾ and the pH values collected in the garden soils of the village to define a triangular distribution. The measured pH going from 5.3 to 8.3, the minimum and maximum values for the closest ranges of soil pH given by the Office of Air and Radiation, were used as minimum and maximum of the distribution (150 L/kg and 23,279 L/kg respectively). The mode was assigned a value of 1731 l/kg, which was calculated from the modal value of measured pH and the relationship between lead Kd and pH.

Model B

The key parameters required for model B are the soil-plant transfer coefficients. To obtain values, we made a review of the primary literature and fitted the resulting dataset of selected values to a lognormal distribution⁽¹⁹⁾.

Environmental parameters

Model A

For model A we used the default distributions provided by CalTOX for all environmental parameters except area, rainfall, wind speed, and temperature. We replaced distributions for these parameters in CalTOX by local data. In addition we replace the CalTOX root zone soil depth with a mean value equal to 0.2 m to be consistent with the measured data for the village.

Model B

As for chemical properties, most of environmental parameters required in model B are different from those of CalTOX. They mainly concern the description of the various categories of plants. Distributions were defined from the literature⁽¹⁹⁾.

Intake parameters

From birth to the age of 7, we defined plant consumption and lead exposure from local food consumption for seven age classes based on French surveys^(44, 45). The quantities of fruit and vegetables were organized according to the categories considered in each model.

For soil ingestion, we used the cumulative distribution provided by ISE with a median equal to 135 mg/d^(33, 46). We note that other distributions with lower median values were available from empirical data published by Thompson *et al.*⁽⁴⁷⁾ and Stanek *et al.*^(48, 49). However, the IEUBK model was calibrated with a point estimate equal to 135 mg/day. But the lognormal distribution given in the ISE's model for soil ingestion, has a standard deviation that appears too low relative to what is available in the literature. For example, the ratio of the 95th percentile to the 5th percentile in the ISE distribution is less than 2, indicating almost no inter-individual variability. We did use the ISE age-specific weighting factors for soil ingestion in our recoded version.

For model B, we use observed individual data for each child from the study population to obtain the age, the seasonal variation in the percentage of home-grown fruits and vegetables consumed, and the date of moving into the village.

Uptake parameters

We adapted the lognormal distributions defined in the ISE model for the half-saturation level and the passive fraction. The bioavailability of lead in food and the relative bioavailability of lead in soil were revised to better reflect data documented in IEUBK for these factors. A standard deviation of 0.05, instead of 0.2 given by the ISE model, was defined for the lognormal distribution of the food lead bioavailability, because 0.2 yielded bioavailability values too scattered compared to the estimate provided by the USEPA in the IEUBK guidance⁽³³⁾.

For the absolute bioavailability of soil lead, ISE gives a point estimate of 0.3, but no distribution is defined. We used the values collected by Ruby *et al.*⁽⁵⁰⁾ for lead uptake from soils (data from wastes and mines were eliminated), to define a normal distribution with a mean equal to 0.6 and a standard deviation equal to 0.2 for the relative bioavailability of soil lead. The mean of the soil lead absolute bioavailability obtained is then close to the point estimate used in the IEUBK and ISE models.

PROBABILISTIC COMPUTATION

All of our calculations were based on Monte Carlo simulations using 5000 runs with latin-hypercube sampling. We used the Monte Carlo results to develop cumulative probability distributions that can be compared to cumulative distributions of lead exposure in the study population.

RESULTS AND DISCUSSION

MODEL A

Because no significant statistical relationship between the blood level and the age could be identified⁽²⁰⁾, we analysed the model's output as the mean of the blood lead from 6 months to 7 years old.

Figure 2 shows the probability plot charts for the (base 10) logarithms of the observed and predicted concentrations in the different exposure media. For blood lead, figure 2e shows the concentrations calculated by the integrated model and those predicted with the new version of IEUBK from the measurements performed in the samples of surface soil, fruit and vegetables collected in the village.

The observed values in air, ground soil, exposed produce and blood lead tend to follow lognormal distributions. However, concentrations above 500 mg/kg in the ground soil deviate from a lognormal distribution (these values correspond to a small area close to the facility and without dwelling). The distributions of the calculated concentrations in air and ground soil also follow lognormal distributions, whereas the distributions of the concentrations for the protected produce, the exposed produce and in particular for the blood lead are characterized by two different slopes, indicating bimodal distributions.

Except for the exposed produce, the median values predicted by the integrated model are in good agreement with the observed medians. The predicted median-to-observed median ratios are between 0.5 and 1.3 for these media. But for the exposed produce, the ratio is equal to 18.

Regarding distributions, the observed data for ground soil are well captured until 500 mg/kg. The ranges of the observed and predicted values for the air concentrations are close and the two distributions are quite similar. But for protected produce, the distribution of the observed data is underestimated and above all the distribution of the observed concentrations for exposed produce is overestimated. For blood lead, the variability of the calculated concentrations is higher than that of the observed concentrations. In the case of concentrations predicted from the measurements performed in the exposure media, blood lead concentrations are underestimated up to the 90th percentile, then they are overestimated. The values predicted from the integrated model are higher and the difference between the two distributions of calculated concentrations increased with percentiles.

As the ingestion of the exposed produce is the predominant pathway in the upper percentiles of the distribution of the predicted blood lead concentrations (figure 3), the overestimation of the exposure produce concentrations contributes to the overestimation of the upper part of the distribution of blood lead concentrations predicted by the integrated model.

In order to understand the reasons for the overestimation of the exposed produce concentrations, we carried out a sensitivity analysis with Crystal Ball. The parameters with the highest contributions to the variance are listed in Table II in descending order.

The distributions of the first two parameters with the highest sensitivity (particle-water partition coefficient and root-soil concentration) were defined by taking into account specific data from the studied site. The third parameter is the leaf wet density (ρ_{leaf}). The default value, which was used in the computations, was equal to 820 kg/m^3 . With a volume fraction of water in leaf (β_{leaf}) equal to 0.5, as provided in CalTOX, we get a value of 0.61 for the mass water fraction ($0.5 \times 1000 / 820$), whereas the data for the exposed produce (leafy vegetables) collected in the gardens ranged from 0.77 to 0.98. So, we determined a new value for the leaf wet density on the basis of the mean of the leaf mass water fraction measured in the collected samples of exposed produce (0.91). We found a value equal to 550 kg/m^3 . It remains in accordance with the typical values used in models for leaf wet density, which are comprised between 500 and 900 kg/m^3 (51-55).

As a result, the distribution obtained for the exposed produce concentrations is closer to that of the observed concentrations (figure 4a, curve 3). The predicted concentrations were divided nearly by a factor 2, except at the lower tail of the distribution. The air, soil and protected concentration distributions were not altered by this change, but the variance in the predicted blood-lead concentrations (calculated by the integrated model from the predicted concentrations in produce) was reduced (figure 4b, curve 3).

For the other parameters pointed out in the sensitivity analysis, we found no new data justifying any modifications of the default values and significantly improving the prediction of the exposed produce concentrations.

But, we needed to consider that fruits and vegetables had been washed before the analyses and recognized that the impact of washing is not considered in the model. Unfortunately, the extent to which such a treatment reduces the contribution of air deposition and rain-splash to fruit and vegetables contamination is not well known. In our model, if the contributions of both these pathways are divided arbitrarily by ten, it appears clearly that the lower part of the predicted distribution is closer to that of the observed concentrations data (figure 4a, curve 4). That means that the variability of the measurements is better reproduced by the model, which finally over-predicted the concentration in fruits and vegetables by only a factor 4 at the median, under these assumptions. The distribution of the blood lead concentrations predicted from the integrated model is then very close to that predicted by the new version of IEUBK from the exposure media measurements (figure 4b, curves 4 and 5).

Nevertheless, the final distribution of the predicted blood lead still deviates from the distribution of the measured data at the upper percentiles. This deviation may be due to the fact that in the sample of children tested, those with the highest consumption of kitchen garden foods were those living the farthest away from the facility, thereby with the lowest lead concentrations in plants. In other words, the actual consumption of home-grown produce in the village is overestimated by the model, which assumes a homogeneous distribution of the home-grown produce consumptions within the village.

MODEL B

The results of model B are provided in Figure 5 where we see that the measured blood lead levels are between the 5th and the 95th percentiles of the model results, with the exception of child 43. The measured blood-lead levels correspond to various percentiles of the distribution given by the model, going from the 25th to the 88th percentile according to the different children. Measured values of blood lead above the predicted median ratios are between 0.7 and 1,7 (excluding the results corresponding to child 43).

Model B was able to capture the blood-lead-level ranges for the various conditions tested, except for child 43. The discrepancy between the model output and the blood lead level measured for this child may be explained by the fact that this child lived in an old house built before the ban of lead for interior paint, and that the child was the only one of the sub-sample studied here who was reported as drinking only tap water. Neither of these exposure pathways are taken into account by the model.

It has to be noted that using either the Thompson *et al.*⁽⁴⁷⁾ or Stanek *et al.*⁽⁴⁹⁾ distributions for soil ingestion, instead of a distribution centered on the value used to calibrate IEUBK for soil ingestion, results in lower estimates of blood lead concentrations, especially when the soil ingestion is a significant contributor to overall exposure. For example soil ingestion dominates when the children consume few or no homegrown foods, and when the soil lead concentration is high. In the sub-sample tested here, the geometric mean of the measured median above the calculated value ratio would increase from 1.1 to 1.3, if the distribution used for the quantity of soil ingested was replaced by Thompson *et al.*'s distribution and it would reach a higher value with Stanek *et al.*'s distribution.

The uncertainty in the modelled blood lead predictions for model B are reflected by the ratios of the 95th percentile to the 5th percentile, which are between 2.6 and 4.9. The widest 90% interval is given for child 28. In this case, the root soil concentration is the highest contributor to the variance. This high contribution is due to a lack of precision in the estimation of the root soil concentration in the child's living area. Increasing the sampling efforts in the farthest areas of the village could permit the reduction of the overall uncertainty.

In order to illustrate contributions from different exposure pathways, figure 6 shows the contributions of the various pathways to the cumulative exposure for child 28, who ate a relatively large amount of home-grown plants and lived relatively far from the facility, and for child 71, who did not consume kitchen garden plants but who lived close to the facility.

Although model A and model B are based on different approaches and address different questions, the results of both models provide similar observations with respect to pathways contributions. Model A indicates that the highest blood levels are linked to the ingestion of home-grown produce, whereas model B shows that the highest consumers of home-grown produce are among those who have the highest blood lead. However, model B is able to predict blood lead distributions with lower variance. Indeed, part of the inter-individual variability, had to be integrated in the input distributions used in model A, while model B took it into account by a better description of the influence of the distribution of lead deposition.

CONCLUSIONS

Both models provide useful insight regarding source-to-dose relationships for the exposure population. Model A is effective in addressing general trends and model B is more focused on capturing individual exposures. Using the two models together with population and site-specific measurements of blood lead and environmental conditions provides for this population's lead exposure patterns a level of understanding that could not be achieved with either model alone or with just the blood surveillance measurements.

Model A provides an ability to capture the distributions of lead in the media and the blood lead concentrations at a local scale. It offers the opportunity to identify the pathways of concern and to characterize also the distribution of the exposure level. From the initial results of the model, mainly used with default values, the information from the sensitivity analysis and the pathway contributions evaluation helped us to identify the parameter improvements needed to calibrate the model to this specific population. This was done by adjusting uncertain parameters to reduce the deviation between measurements and the predictions.

Model B had the ability to be adapted to track various geographic zones and specific individual. In the form used here, the model B system was set up to answer some specific questions, such as “in which zones or from which distance, may the consumption of home-grown produce raise a health concern ?” In the small sample of cases tested here, which correspond to contrasting exposure situations, the results provided by model B are in accordance with the measurements, apart from the case involving exposure pathways that are not yet considered in the model. By its ability to resolve individual exposure conditions, model B can predict blood lead distributions with lower variance than model A. This feature is important for discriminating those situations that require management measures from those which do not, especially for lead, for which the classical action threshold is rather low (100 µg of lead per liter of blood).

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors thank the local administration (DRIRE and DDASS), the director's facility, ATMO Champagne and the company GSD for communicating their data, as well as the studied village inhabitants who permitted us to take samples from their garden and the mayor for his help. We also thank F. Bois of Institut of Industrial Environment and Risks for his review of the paper and M. Sohn of Lawrence Berkeley National Laboratory for his guidance and input on this work. R. Bonnard's work was supported by the French Ministry of Ecology and Sustainable Development (Budget Civil de la Recherche et du Développement, grant BRCD-DRC-06-03). T. McKone was supported in part by the US Environmental Protection Agency through Interagency Agreement DW-988-38190-01-0 carried out through the US Department of Energy contract Grant No. DE-AC02-05CH11231. McKone was also supported by Cooperative Agreement Number U19/EH000097-03 from the US Centers for Disease Control and Prevention (CDC).

REFERENCES

1. Bonnard R. (2006). Estimation de l'impact des rejets des installations industrielles et utilisation de la démarche d'évaluation des risques à l'étranger, Rapport d'étude n°76413/197, INERIS, DRC-08-57041-08269A, 42 p + annexes.
2. OEHHA (Office of Environmental Health Hazard Assessment) (2003). The Air Toxics Hot Spots Program Guidance manual for preparation of health risk assessment, Oakland, California, 302 p.
3. INERIS (Institut de l'Environnement Industriel et des Risques) (2003). Evaluation des risques sanitaires dans les études d'impact des installations classes, Guide méthodologique, Verneuil-en-Halatte, Francen 152 p.
4. European Commission (2003). Technical Guidance Document on risk assessment of substances following european regulations and directives, Second edition, European Chemicals Bureau.
5. European Commission (2004). European Union System for the Evaluation of Substances 2.0 (EUSES 2.0). Prepared for the European Chemicals Bureau by the National Institute of Public Health and the Environment (RIVM), Bilthoven, The Netherlands. Available via the European Chemicals Bureau, 454 p.
6. WHO (World Health Organization) (1993). Guidelines for drinking water quality, Volume 1, Recommendations.
7. WHO (World Health Organization) (2000)., Air quality guidelines for Europe, Second edition, WHO regional publications, European series, n°91, 288 p.
8. US EPA, Office of Solid Waste and Emergency Response, Waste and cleanup risk assessment, www.epa.gov/oswer/riskassessment/risk_superfund.htm
9. Ferguson C.C. (1999). Assessing Risks from Contaminated Sites: Policy and Practice in 16 European Countries, Land Contamination & Reclamation, 7 (2), 33-54.
10. Oreskes N. (1998). Evaluation (not validation) of quantitative models, Environmental Health Perspectives, Vol.6, supplement 6, 1453-1460.
11. NRC (National Research Council) Committee on Models in the Regulatory Decision Process (2007), Models in Environmental Regulatory Decision Making, National Academies, Washington DC, 174 p.
12. Schwartz (2000). Quality assurance of exposure models for environmental risk assessment of substances, Doctorat thesis, Institute of Environmental Systems Research, University of Osnabrück, 186 p.
13. Armitage J., Cousins I., Hauck M., Harbers J., Huijbregts M. (2007). Empirical evaluation of spatial and non-spatial European-scale multimedia fate models : results and implications for chemicals risk assessment, Journal of Environment Monitoring, 9, 572-581.
14. Luo Y., Yang X. (2007) A multimedia environmental model of chemical distribution : fate, transport, and uncertainty analysis, Chemosphere, 66, 1396-1407.
15. Kawamoto K., Park K.A. (2006). Calculation of environmental concentration and comparison of output for existing chemicals using regional multimedia modelling, Chemosphere, 1154-1164.

16. Cohen J.T., Beck B.D., Bowers T.S., Bornschein R.L., Calabrese E.J. (1998). An arsenic exposure model : Probabilistic validation using empirical data, Human and Ecological Risk Assessment : Vol. 4, n°2, 341-378
17. Griffin S., Goodrum P.E., Diamond. G.L., Meylan W., Brattin W.J., Hassett J.M. (1999). Application of a probabilistic risk assessment methodology to a lead smelter site, Human and Ecological Risk Assessment, Vol. 5, n°4, 845-868
18. Dor F., Empereur-Bissonnet P., Zmirou D., Nedellec V., Haguenor J.M., Jongeneelen F., Person A., Dab W., Ferguson C. (2003). Validation of multimedia models assessing exposure to PAH - The SOLEX study, Risk Analysis, Vol. 23, 5, 1047 – 1057
19. Bonnard R. (2008). Amélioration des méthodes d'estimation prospective des expositions des populations autour des ICPE, Rapport BCRD03-DRC06, DRC-08-57041-14967A Schmitt M., Deshayes F., Fradet M.R., Coquet S., Brun N., Humbert B. (2002). Nouvelle enquête sur l'imprégnation saturnine des enfants de Bourg-Fidèle, DRASS de Lorraine, CIRE Est, DDASS des Ardennes, InVS, 39 p.
20. Schmitt M., Deshayes F., Fradet M.R., Coquet S., Brun N., Humbert B. (2002). Nouvelle enquête sur l'imprégnation saturnine des enfants de Bourg-Fidèle, DRASS de Lorraine, CIRE Est, DDASS des Ardennes, InVS, 39 p.
21. ATMO-champagne, www.atmo-ca.asso.fr.
22. AFNOR, NFX43-026 (1990) Qualité de l'air, Air ambiant, Détermination du plomb dans les aérosols, spectrométrie d'absorption atomique.
23. Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc à Bourg-Fidèle, GSC (Gestion des sites et sols contaminés), campagne 2002, campagne 2003, campagne 2004, campagne 2005.
24. ISO 4222.2 (1989), Air Quality - Measurement of atmospheric deposit - Horizontal deposit gauge method
25. CEN, EN 13346 (2000). Determination of trace elements and phosphorus –aqua regia extraction methods.
26. ISO 11885 (1996). Water quality – Determination of 33 elements by inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy.
27. Adriano (1986). Trace elements in the terrestrial environment. Springer, New-York, 533p.
28. Alloway (1995). Heavy metals in soils, second edition. Blackie. Academic & Professional, London, 368 p.
29. Kabatia-Pendias (1992). Trace elements in soils and plants, second edition. Boca. Raton, Florida, CRC Press, 365 p.
30. Numtech, Atmospheric Dispersion Modelling System, ADMS 3, Information on the model available at <http://www.numtech.fr>
31. McKone T. (1993). A multimedia total exposure model for hazardous-waste sites, UCRL-CR-111456, Part I-IV, Lawrence Livermore National Laboratory : Livermore.
32. McKone T. (2002). A multimedia total exposure spreadsheet user's guide Version 4.0: Lawrence Berkeley National, 47399, 37 p.

33. US EPA, Office of Solid Waste and Emergency Response (1994). Guidance manual for the Integrated Exposure Uptake Biokinetic model for lead in children, PB93-963510.
34. Decisioneering, Crystal Ball 7.2, Professional edition (2005). http://www.decisioneering.com/crystal_ball/index.html
35. Syracuse Research Corporation (2003). ISE, Biokinetic model for lead, Windows version 1.41.
36. Glorennec P. (2006). Aide à la décision d'un dépistage systématique du saturnisme infantile autour des sites industriels en France, Mémoire de thèse, Université de Rennes, Faculté de médecine, 197 p.
37. Statsoft, Statistica, Edition 99 for Windows, Kernel version 5.5, www.statsoft.com.
38. Foucart T. (1997). L'analyse des données, Mode d'emploi, Presses universitaires de Rennes, 188 p.
39. US EPA, Office of Solid Waste (2005). Human Health Risk Assessment Protocol for hazardous waste combustion facilities (HHRAP), report EPA/530/R-05-006.
40. US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Wesley W. (2003). Biosphere model report, MDL-MGR-MD-000001 Rev00, 412 p.
41. Declercq C., Ladrière L. (2004). Programme de dépistage du saturnisme infantile dans 9 communes du Nord et du Pas de Calais, CLIS Métaleurop, 29 Septembre 2004
42. Chilès J.P., Delfiner P., Geostatistics : modeling spatial uncertainty. Wiley, New-York, 1999, 695 p.
43. US EPA, Office of Air and Radiation (1999). Geochemistry and Available Kd Values for Selected Inorganic Contaminants. Vol. 2, Report EPA-402-R-99-004b, 341 p.
44. Volatier (2000). Enquête I individuelle et nationale sur les consommations alimentaires, Editions Technique & Documentation, ISBN : 2-7430-0426-6. Editions Tec&Doc, 158 p.
45. Boggio, Grossiord, Guyon, Fuchs, Fantino (1999). Consommation alimentaire des nourrissons et des enfants en bas âge en France en 1997, Archives Pédiatrique, 6, 740-747.
46. US EPA, Office of Solid Waste and Emergency Response (1999). Short sheet : IEUBK model soil/dust ingestion rates, EPA #540-F-00-007, 5 p.
47. Thompson K., Burmaster D. (1991). Parametric distributions for soil ingestion by children, Risk analysis, Vol. 11, n°2, 339-342
48. Stanek E., Calabrese E. (2000). Daily soil ingestion for children at Superfund site, Risk Analysis, Vol. 20, n°5, 627-635
49. Stanek E., Calabrese E., Zorn M. (2001). Soil ingestion distributions for Monte Carlo risk assessment in children, Human and Ecological Risk Assessment, Vol. 7, n° 2, 357-368.
50. Ruby M., Schoof R., Brattin W., Goldade M., Post G., Harnois M., Mosby D., Caastel S., Berti W., Carpentier M., Edwards D., Cragin D., Chappel W. (1999).

Advances in evaluating the oral bioavailability of inorganics in soil for use in human health risk assessment, Environmental Science & Technology, Vol. 3, n°21.

- 51. Paterson S.D., Mackay D., Gladman A. (1991). A fugacity model of chemical uptake by plants from soil and air. Chemosphere, 23 : 539-565**
- 52. Riederer M.(1990). Estimating partitioning and transport of organic chemicals in the foliage atmosphere system, Environmental science and Technology, 24, 829-837**
- 53. Bacci E., Cerejeira M. J., Gaggi C., Vighi M. (1992). Chlorinated dioxins – Volatilization from soils and bioconcentration in plant leaves. Bulletin of environmental contamination and toxicology , 48, 401-408**
- 54. Trapp S., McFarlane J. (1994). Plant contamination : modelling and simulation of organic chemical processes, 254 p., ISBN 1566 700 787.**
- 55. Maccrady J.K., Maggard S.P. (1995). Uptake and photodegradation of 2,3,7,8 tetrachlorodibenzo-dioxins sorbed to grass foliage. Environmental science and technology, 27, 343-350**

Figure 1: Top view of the village with the breakdown in sectors (sectors 1: sectors with a low frequency of wind blowing from the facility, sectors 2: sectors with an intermediate frequency of wind, sectors 3: sectors with a high frequency of wind) – white cross : location of the air sampling device

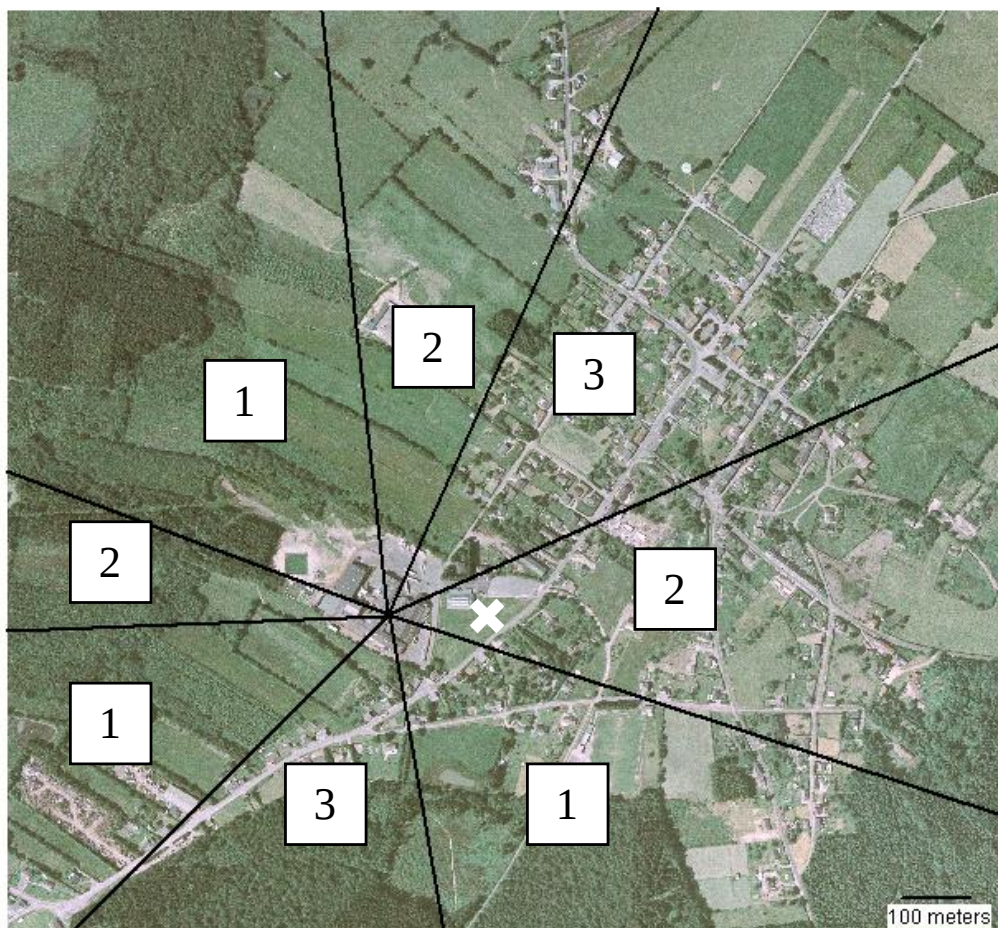


Table I: Cases investigated with the model B

child number	age(month)	blood lead (µg/l)	distance to the stacks (m)	% home-grown fruit	% of home-grown vegetables	surface soil lead concentration in the location of the child's home(mg/kg)
48	33	67,1	250	0	50	173
28	47	83,1	900	75	75	96
28	47	83,1	900	75	75	84
27	74	41,5	900	62,5	75	96
27	74	41,5	900	62,5	75	84
41	52	31,9	450	10	20	112
41	52	31,9	450	10	20	103
71	65	44,7	150	0	0	203
71	65	44,7	150	0	0	227
90	37	44,7	300	0	0	261
90	37	44,7	300	0	0	174
97	81	22,3	1000	0	0	66
43	21	108,7	450	0	0	112
43	21	108,7	450	0	0	103
50	71	99,1	200	0	0	493

Figure 2 : Distributions of the measured concentrations and of the concentrations calculated with model A in air (a), ground soil (b), exposed produce (c), protected produce (d) and blood lead (e) (for blood lead, concentrations were also predicted by IEUBK from measurements in the other media)

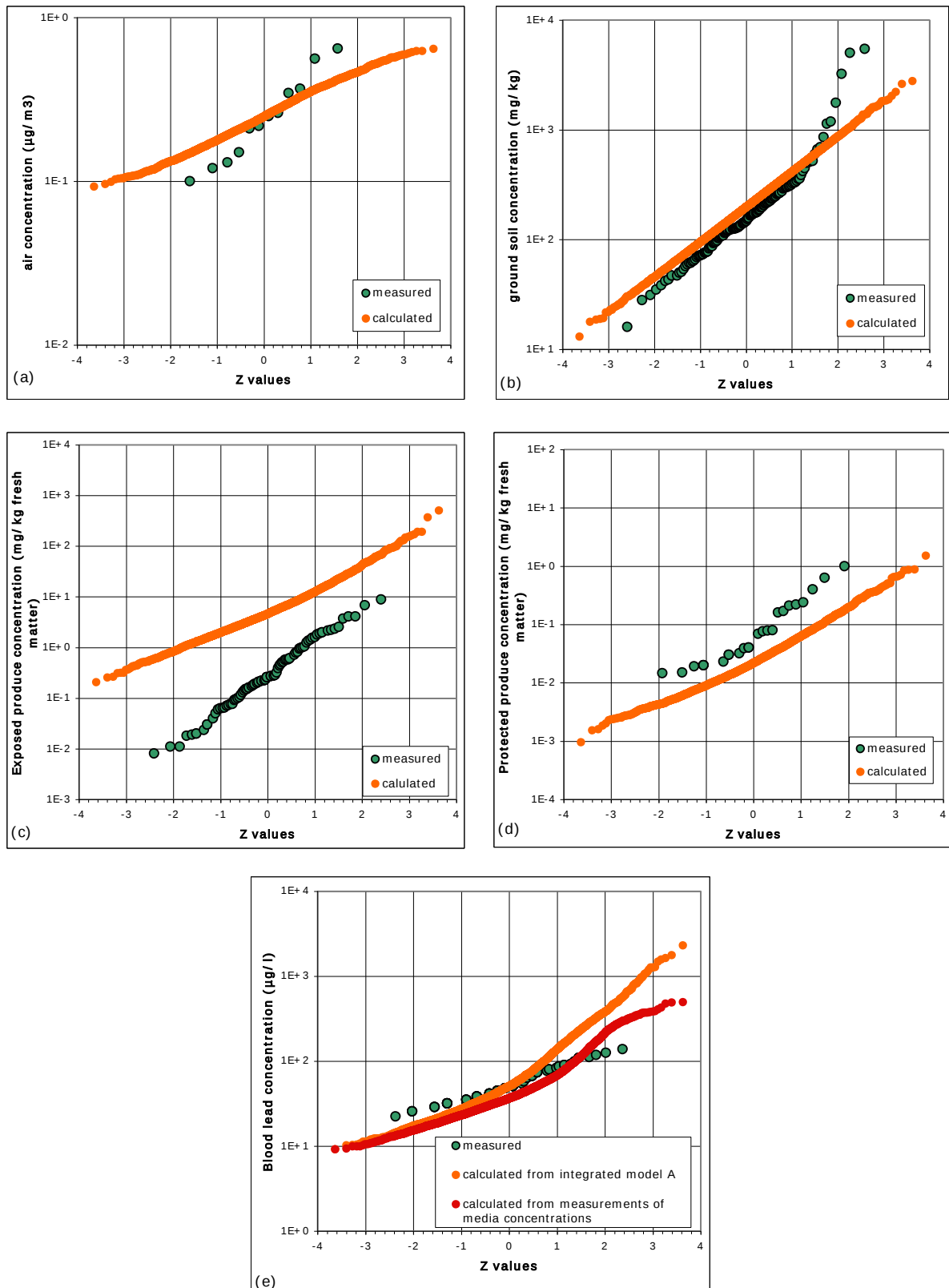


Figure 3: Contributions of the exposure routes to the lead uptake

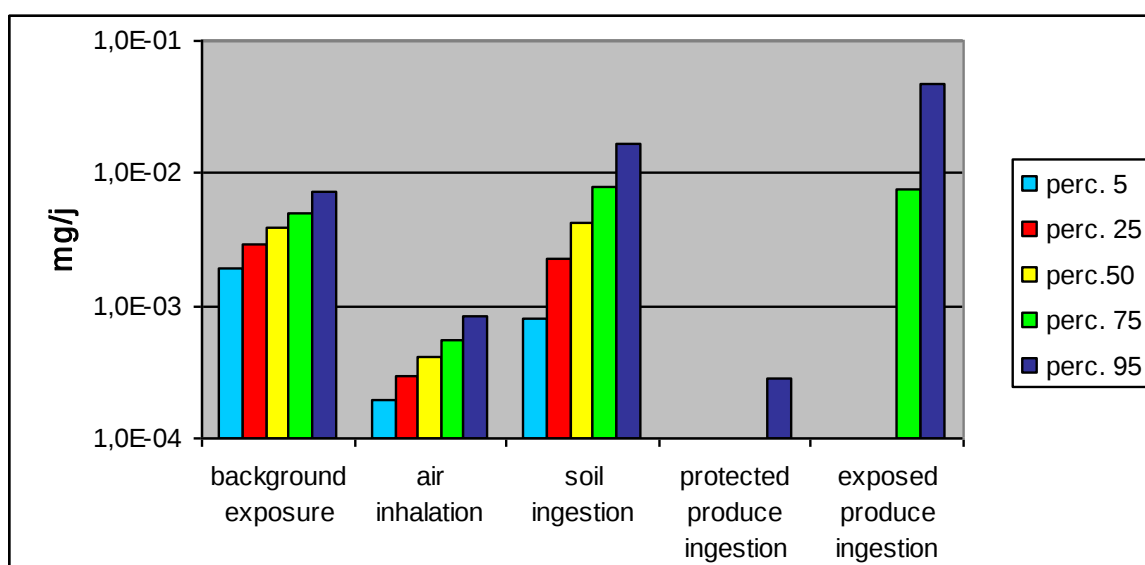


Table II: Input parameters with the highest sensitivity on exposure produce concentrations in model A

Parameters	Symbols	Rank correlation coefficients between the input parameter and exposure produce concentration
Particle-water partition coefficient	Kd	-0,44
Concentration in root-zone soil	Cs	0,41
Leaf wet density	rho_leaf	0,37
Primary production dry vegetation	veg_prod	0,31
Rainsplash	rainsplash	0,21
Leaf surface erosion half-life	Thalf_le	0,14
Stem wet density	rho_stem	-0,12
Annual average precipitation	rain	0,11
Ambient environmental temperature	Temp	-0,09
Land surface runoff	runoff	0,09

Figure 4: Distributions of the measured concentrations and of the concentrations calculated in exposed produce (a) and blood lead (b) before and after adjustment of model A

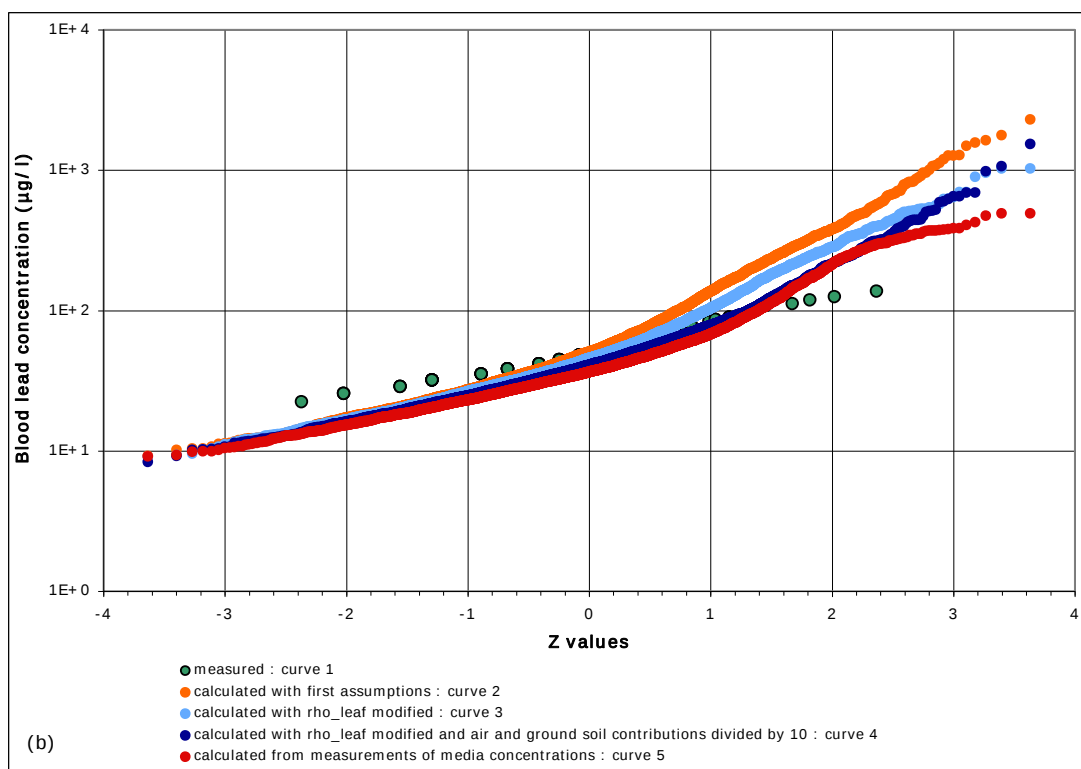
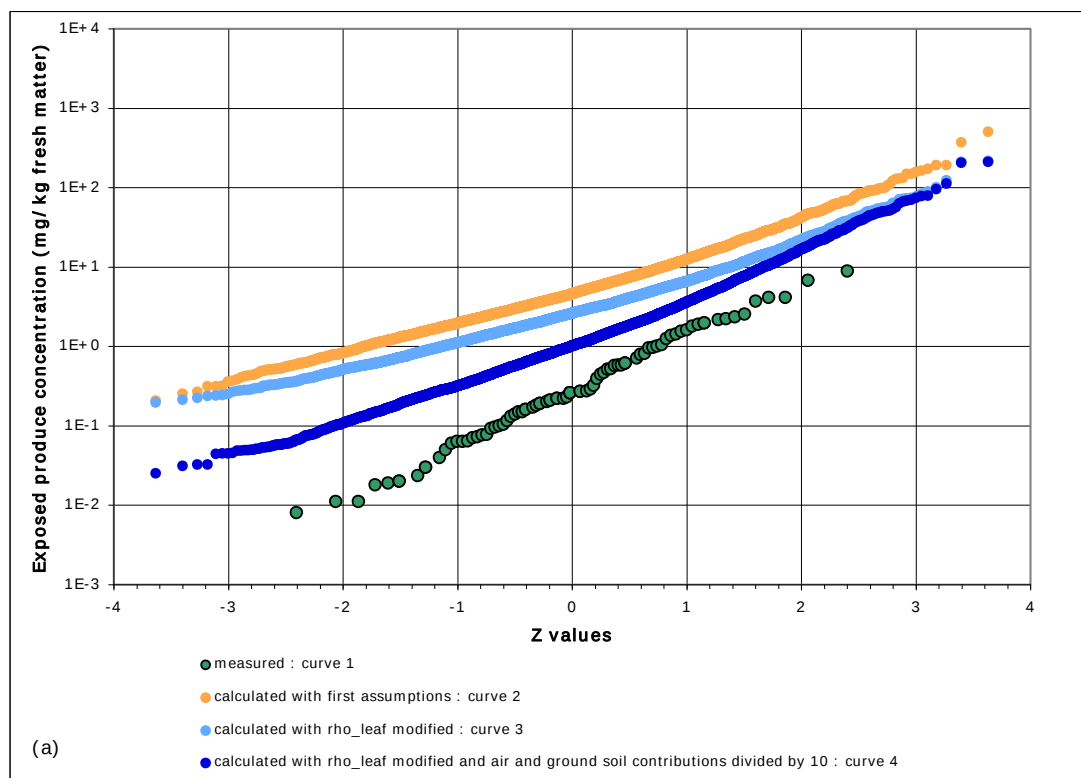


Figure 5: Comparison of the calculated and observed blood lead concentrations for the subsample of tested children – the error bars show the range (from the 5th to the 95th percentile) of calculated concentrations with the model B

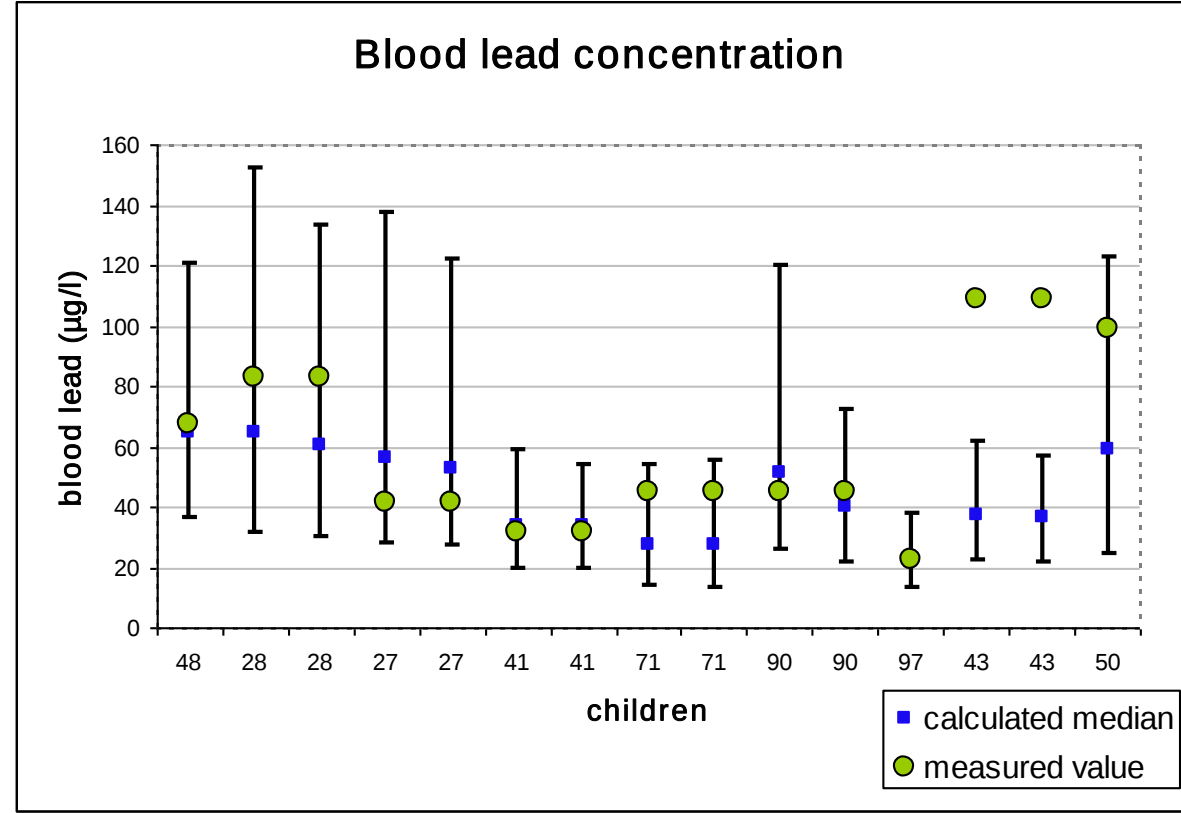
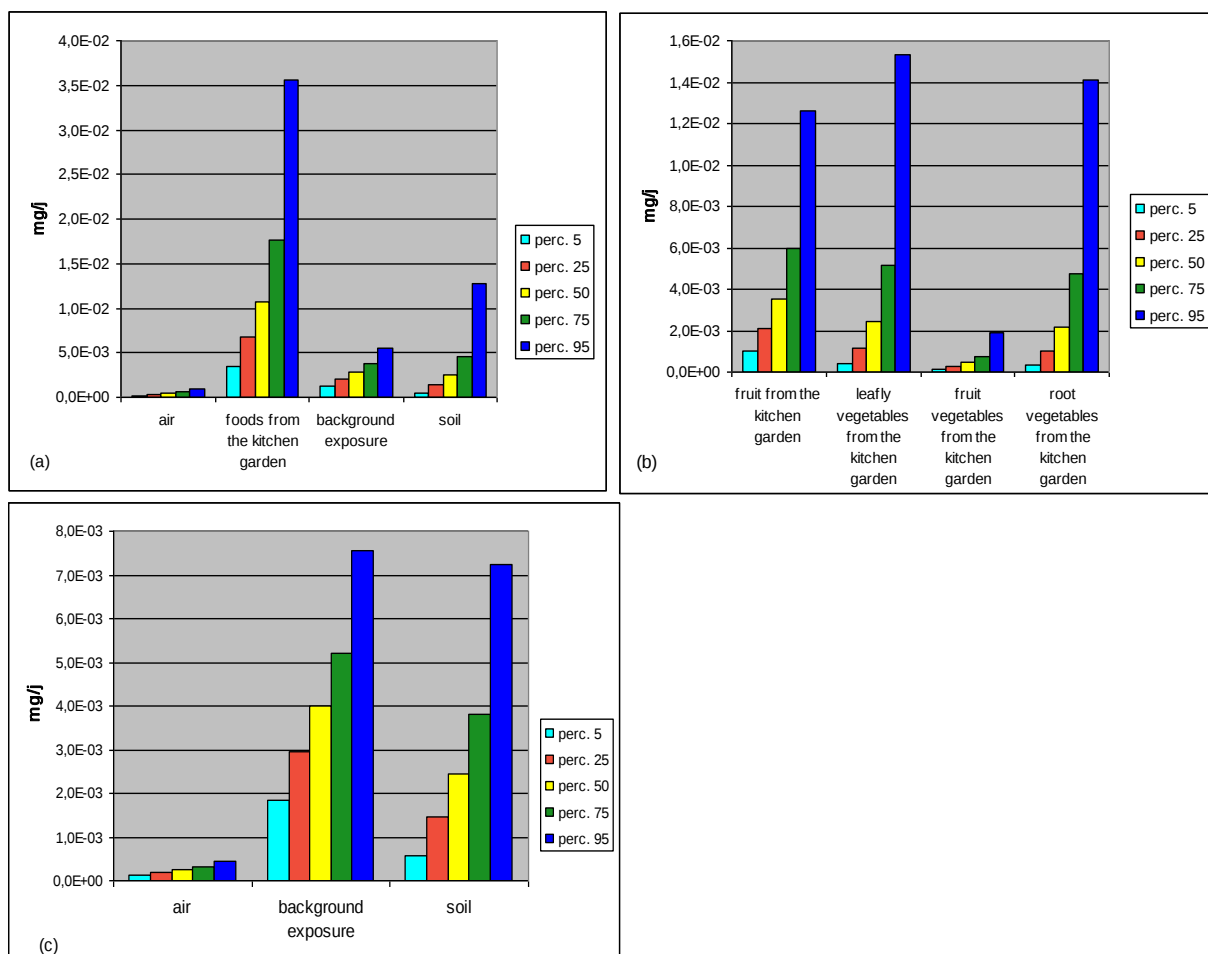


Figure 6: Contributions of the exposure routes to the lead uptake for the child 28 (a,b) and the child 71 (c)



COMPARISON OF LEAD CONCENTRATION IN SURFACE SOIL BY INDUCTED COUPLED PLASMA/OPTICAL EMISSION SPECTROMETRY AND X-RAY FLUORESCENCE

Roseline BONNARD * – Olivier BOUR

INERIS : National Institute for Industrial environment and Risks

* corresponding author : Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte, France
roseline.bonnard@ineris.fr)

Keywords : soil lead concentration, soil samples, in situ measurements, X-ray fluorescence, ICP/OES

ABSTRACT

The lead concentration in the surface soil of a French village, where a secondary lead smelter had been operating for a long time, was investigated. The objective was to define the source term of contamination for modelling the blood lead levels of the children living in that village and comparing the predicted values with the observed data.

The lead concentration was analysed by Inducted Coupled Plasma/Optical Emission Spectrometry (ICP/OES) and by X-ray fluorescence (XRF). During the first campaign, 48 composite soil samples in the first two centimetre layer were collected and prepared in lab for analysis by ICP/OES. Among these samples, 23 were also analysed by XRF. In a second campaign, field measurements by XRF were performed in 133 spots spread over the village, 24 of these spots being places sampled previously.

The analysis of these datasets showed that measurements of soil lead by XRF can provide correct estimates of the soil lead concentrations measured by the reference method.

Statistical analyses showed that ICP/OES analysis gives lower values than XRF analysis. For the samples prepared in lab, a regression coefficient equal to 0,9 was calculated between the two types of results. Regarding the common places tested by the lab method (ICP/OES) and the in-situ method (XRF), a linear regression coefficient could also be defined between the two datasets, but the regression coefficient was smaller. The larger discrepancy between the two kinds of values may be explained by the spatial variability of lead concentration at a small scale and the difference of soil volume explored by sampling and the in-situ approach.

INTRODUCTION

In a village with a long past of soil contamination by lead, the blood lead level of the children population has to be predicted and compared to the observed levels. As the ingestion of surface soil greatly contributes to the exposure of children living on a contaminated site, since a secondary lead smelter had been operating for a long time in the village and some contaminated sand was brought to the ground locally, the collection of many samples was required to have a sufficient knowledge of the source term of exposure and define a map of the lead concentrations by geostatistical methods.

Two campaigns of measurements were organized. The first one consisted of the collection of composite soil samples and analyses at laboratory by the Inducted Coupled Plasma/Optical Emission Spectrometry (ICP/OES). The second one was carried out with a X-Ray Fluorescence (XRF) portable device to perform in-situ analyses.

The present paper examines the accuracy of the concentrations measured by XRF relative to normative method.

METHODS

During the first campaign, 48 samples were taken from the first two centimetres in public areas and private gardens, spread over the village. Each sample was composed from five subsamples, four subsamples surrounding a central subsample located at a distance equal to one meter.

These samples were prepared before being analysed. They were dried, crushed and sieved to 250 μm . Then, they were mineralised according to the European standard procedure EN 13346. Lead concentration was measured by Inducted ICP/OES according to the standard ISO 11885.

Among these samples, 23 ones were selected and their lead concentration was also measured, after drying, crushing and sieving, owing a portable XRF portable device.

In a second campaign, surface soil lead concentrations were determined in 133 zones spread over the village by in situ measurement owing the same XRF portable device. Among these zones, 24 ones had been sampled previously to perform a laboratory analysis. The XRF measurement was then carried just close to the location of the central subsample. Depending on the cases, additional measurements were made next to the location of the other subsamples and/or on the bottom surface of the hollows left by the subsamples. So, according to the zones, from one to ten XRF measurements were performed on the area where surface soil had been previously sampled.

RESULTS AND DISCUSSION

Comparison of the lead concentrations measured by ICP/OES and by XRF for the samples prepared at laboratory

In figure 1, the concentrations measured by XRF (C_{XRF}) are plotted against the concentrations analysed by ICP/OES ($C_{\text{ICP/OES}}$). The horizontal bars represent the 95% uncertainty interval for the measurements carried out by ICP/OES. The correlation coefficient between the two datasets is equal to 0.99. Nevertheless, two spots have a concentration by XRF slightly higher than the upper bound of the 95% confidence interval of the corresponding concentration measured by ICP/OES.

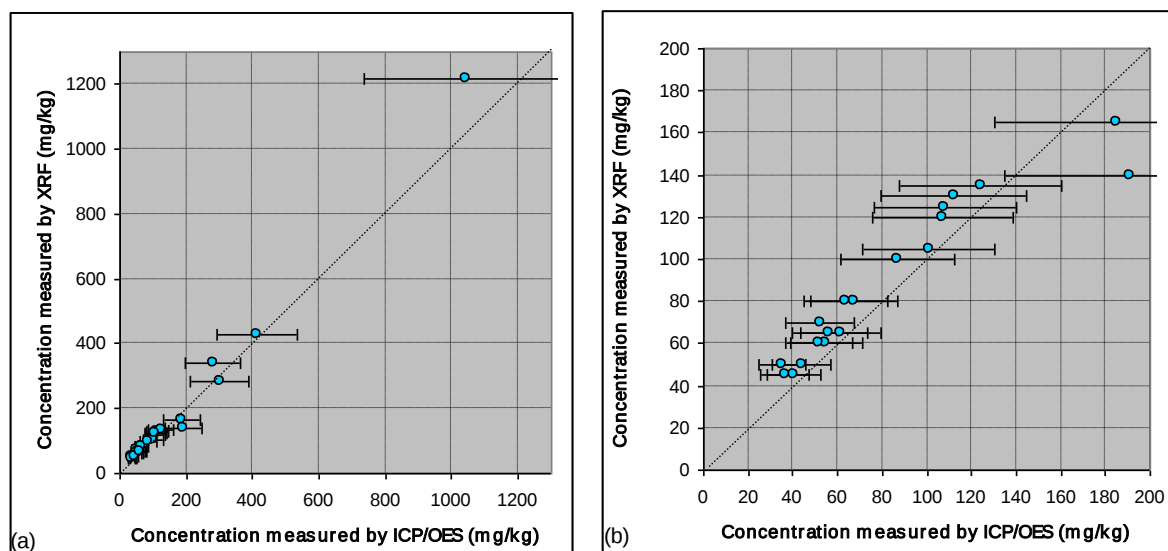


Figure 1 : Comparison of the lead concentrations measured by ICP/OES and by XRF for the samples prepared at laboratory – (a) : a view of the whole range of concentrations tested, (b) : an enlargement for concentrations inferior to 200 mg/kg

The linear regression between the two datasets were investigated.

The model obtained by the least squares method has a slope equal to 0,86 and an intercept equal to 8.32. The coefficient of determination is very high (0.99). But, the residuals do not follow a normal distribution and the property of homoscedasticity is not checked. Moreover, the residuals are slightly negative for the soil lead concentrations ($C_{ICP/OES}$) inferior to 185 mg/kg and beyond they are much larger.

To improve the model, a least square regression weighted by C_{XRF} was tested as variability seems to improve with soil lead concentration. The relationship between the concentrations measured by XRF and those analysed by ICP/OES is the following one :

$$C_{ICP/OES} = 0.92 C_{XRF} + 1.12 \quad \text{equation 1}$$

with a coefficient of determination (R^2) equal to 0.97.

The residuals from equation 1 have a normal and homogeneous distribution for soil concentrations inferior to 185 mg/kg. Above this value, the residuals are higher and the predicted concentrations are less accurate. Nevertheless, the low bias observed with the former model for the calculated concentrations below 185 mg/kg has disappeared and their 95% uncertainty intervals are narrower.

Furthermore, for all the samples, the 95% uncertainty intervals calculated owing to this linear model based on the XRF measurements overlap with the 95 % confidence intervals of the soil lead concentrations determined by the ICP/OES method (see figure 2).

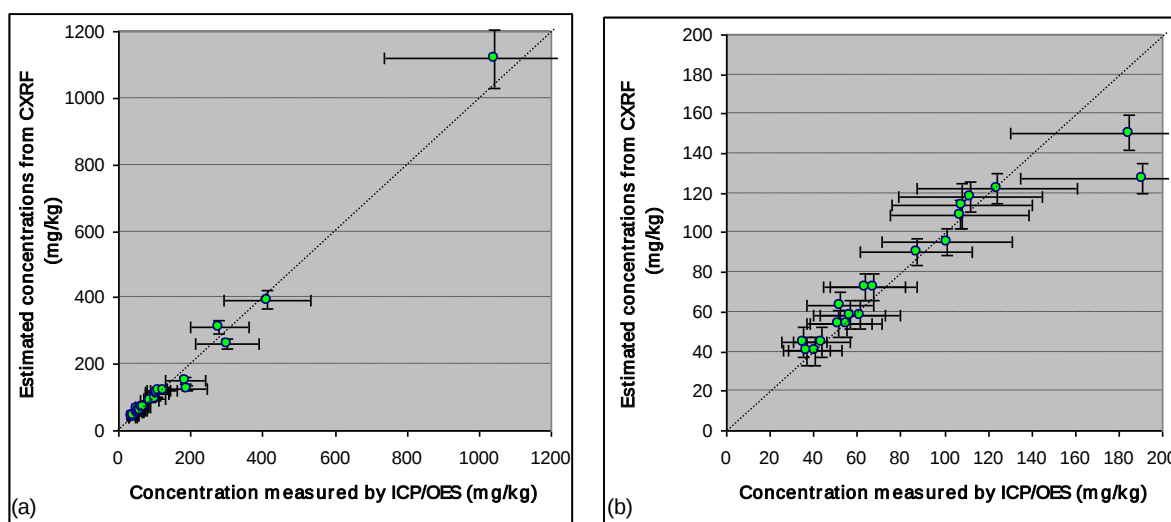


Figure 2 : Comparison of the lead concentration measured by ICP/OES with the predicted concentrations based on equation 1 - (a) : a view of the whole range of concentrations tested, (b) : an enlargement for concentrations inferior to 200 mg/kg

Comparison of the lead concentrations measured in situ by XRF with the lead concentrations measured at laboratory by ICP/OES in the samples taken at the corresponding locations

The lead concentration measured in situ by XRF in an area was estimated as the mean of the different (from one to ten) measurements carried out in this area. The coefficient of determination between this dataset and the lead concentrations measured at the laboratory ICP/OES in the corresponding samples is equal to 0.97. But in a quarter of the cases, the mean of the concentrations measured by XRF is not included in the 95% confidence interval of the measurement determined by ICP/OES at laboratory (figure 3).

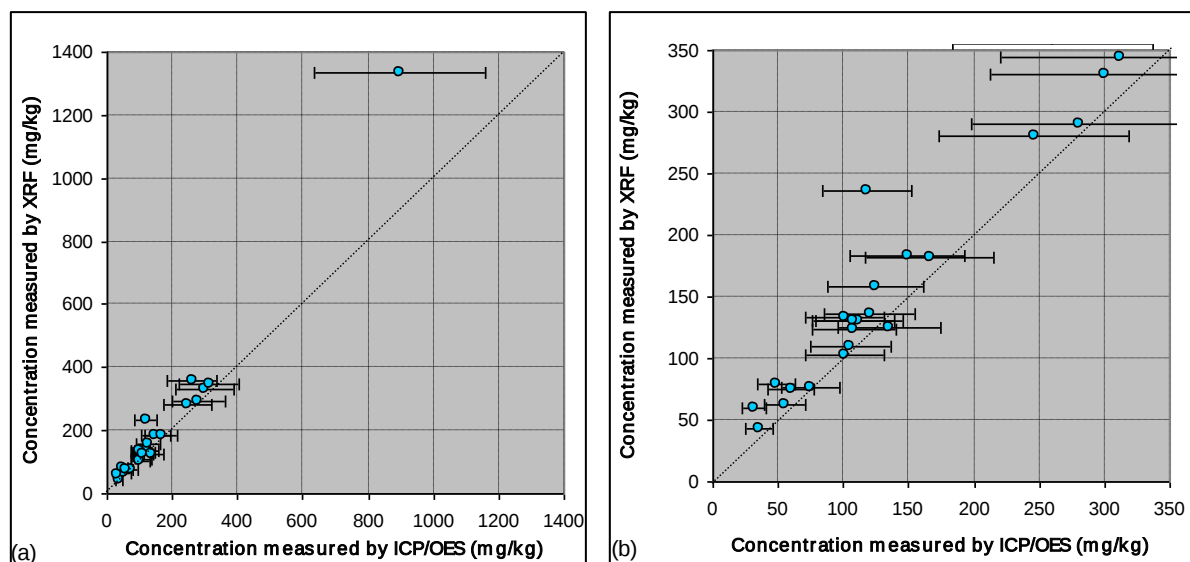


Figure 3 : Comparison of the lead concentrations measured by XRF with the concentrations measured in the corresponding samples prepared at laboratory – (a) : a view of the whole range of concentrations tested, (b) : an enlargement for concentrations inferior to 350 mg/kg

The equation of the linear regression between the two datasets can be written as follows :

$$C_{ICP/OES} = 0.67 C_{XRF} + 25.6 \quad \text{equation 2}$$

The coefficient of determination (R^2) is equal to 0.97 and the residual standard deviation has a value of 29.7.

In spite of the high coefficient of determination, this model is not good because there is a clear linearity of the residuals versus the XRF concentrations. The least-squares regression weighted by C_{XRF} slightly reduces the relative errors attached to the predicted concentrations, but the linearity of the residuals, even for low concentrations, can still be observed.

In fact, the different measurements made by XRF in the area of a composite sample reveal a local variability of the soil lead concentration, the discrepancy between the different measurements being able to go up above 100%.

Besides, in the ten sampling areas where measurements by XRF were performed in the hollows left by the composite samples, the mean concentrations measured in these hollows differ from the mean concentrations determined next to their locations from 2% to 70%.

When the gap between these two means was superior to 40%, the lower of them was used to replace the mean calculated from all the XRF measurements performed in a sampling area. Thereby, four values were removed, three being replaced by the mean concentration in the hollows. The relationship between the concentrations measured in-situ by the XRF method and the concentrations measured by ICP/OES in the samples brought to laboratory was then reinvestigated.

In these conditions, the new regression model obtained by least -squares analysis is the following one :

$$C_{ICP/OES} = 1.0 \cdot C_{XRF} + 22.0 \quad \text{equation 3}$$

The coefficient of determination (Δ^2) is equal to 0.99 and the residual standard deviation has a value of 16.3.

Owing to these changes, the residual standard deviation has decreased with respect to equation 2. The residuals calculated from this relationship are normal and do not reveal linearity. Notwithstanding, a group of a few negative residuals can be observed for concentrations superior to 200 mg/kg. These findings can be explained by the absence of measurement performed in the sampling hollows of the corresponding areas. If some ones had been carried out, lower mean concentrations may have been found, yielding higher residuals, since contamination by atmospheric fallouts tend to induce higher concentrations at the surface of soil.

Unlike the results obtained with equation 2, the 95% uncertainty intervals of the predicted concentrations calculated owing to this model overlap the 95 % confidence intervals of the soil lead concentrations determined by the ICP/OES method for the all 24 spots tested (figure 4).

The calculated concentrations are obtained with a relative error (for a 95% confidence level) comprised between +/- 3 and 44%, the larger relative error being found for the lower soil concentration of the dataset. Regarding the uncertainty linked to the reference method (29.4% at the 95% confidence level), this error seems to be acceptable. Yet, if the lead concentration of a new spot needs to be predicted from this model, the equation's error has to be added, which increases the width of the uncertainty on the predicted value. According to the parameters of the model, it appears that the soil lead concentrations measured by XRF should be superior or equal to about 150 mg/kg to get uncertainties on the predicted values inferior or equal to those attached to the values obtained by the reference method.

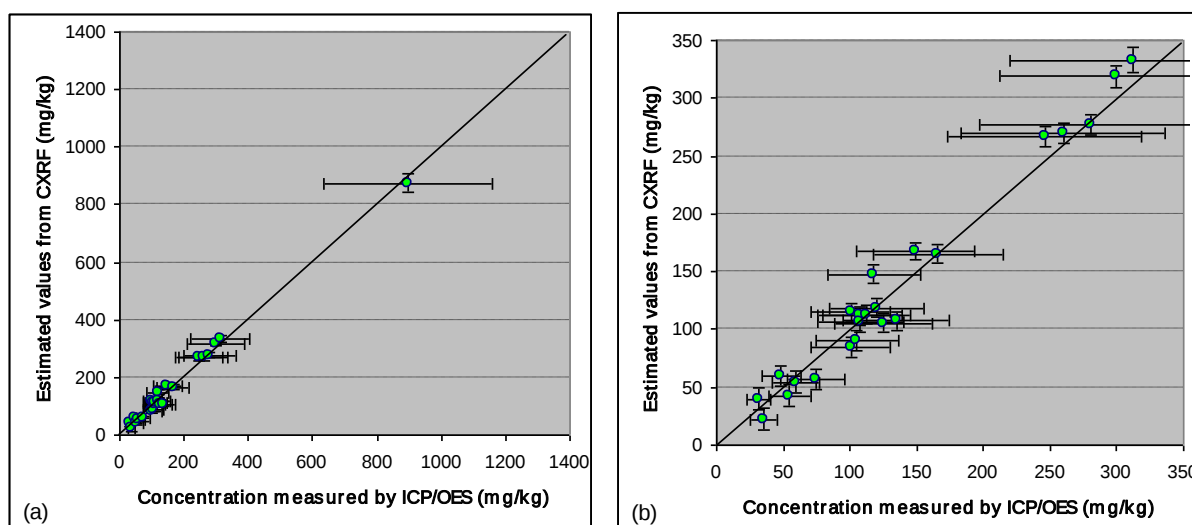


Figure 4: Comparison of the lead concentration measured by ICP/OES with the predicted concentrations based on equation 3 - (a) : a view of the whole range of concentrations tested, (b) : an enlargement for concentrations inferior to 350 mg/kg

Finally, the increase of the regression coefficient from equation 2 to equation 3 (higher closeness) between the concentrations of the two datasets may be explained, on one hand by the difference of soil volume explored by sampling and the in-situ approach, and on the other hand by the low mobility of lead in soil, since lead contamination can be diluted in the samples with respect to the volume analysed by the XRF portable device.

CONCLUSION

The analysis of these datasets showed that measurements of soil lead by XRF can provide correct estimates of the soil lead concentrations measured by the reference method.

Nevertheless, the in-situ measurements can give deviating results because of the small surface investigated by the XRF device during each measurement compared to the area covered by soil sampling. Because of the variability of the soil concentrations at small scale, several points of measurements should be examined in a same area to get a composite result, following the example of what is made for sampling.

On the other hand, the small quantity of soil explored by the XRF technique may provide a more representative estimate of the children's exposure by direct ingestion of soil than an approach by sampling, in which the depth of soil removed is most of the time superior to the one in real contact with children.

REFERENCES

EN 13346 Determination of trace elements and phosphorus –aqua regia extraction methods

ISO 11885 Water quality – Determination of 33 elements by inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy

US EPA, XRF (X-ray fluorescence) Answers to Frequently-Asked Questions, May 2004, www.epa.gov/superfund/lead/guidance.htm#faq

LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Données environnementales	28
Annexe 2	Etude géostatistique du plomb dans les sols	33
Annexe 3	Modèles utilisés dans l'étude	20
Annexe 4	Modélisation des concentrations atmosphériques et des dépôts de plomb au sol	12
Annexe 5	Définition des paramètres d'entrée de la modélisation	83
Annexe 6	Analyse complémentaire des niveaux d'exposition calculés pour le cas type par le modèle INERIS	13

ANNEXE 1

DONNEES ENVIRONNEMENTALES

TABLE DES MATIERES

1	INTRODUCTION	3
2	DONNEES ISSUES DU SUIVI ENVIRONNEMENTAL	4
2.1	Flux canalisés de plomb émis par l'usine	4
2.2	Concentrations mensuelles de plomb dans l'air	6
2.3	Mesure des dépôts de plomb au sol.....	8
2.4	Mesure de plomb dans les végétaux.....	9
3	CAMPAGNE DE MESURE DES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET DES DEPOTS DE PLOMB REALISEE PAR L'INERIS.....	14
3.1	Mode opératoire	14
3.1.1	Mesure du plomb à l'atmosphère	14
3.1.2	Mesure des dépôts	14
3.2	Résultats de la campagne de mesures réalisée par l'INERIS	16
3.2.1	Mesure du plomb à l'atmosphère	16
3.2.2	Mesure des dépôts	16
3.3	Analyse des résultats	17
3.3.1	Mesure à l'atmosphère	17
3.3.2	Mesure des dépôts	18
4	CAMPAGNES DE MESURE DU PLOMB DANS LES SOLS.....	19
4.1	Mode opératoire	19
4.1.1	par prélèvement.....	19
4.1.2	par méthode XRF	20
4.2	Concentrations de plomb mesurées dans les sols	20
5	AUTRES PRELEVEMENTS ET MESURES EFFECTUES.....	24
5.1	Poussières déposées au sol	24
5.1.1	Mode opératoire.....	24
5.1.2	Résultats.....	26
5.2	Eaux d'arrosage	26
6	REFERENCES	28

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Quantité mensuelle de plomb émise par chaque cheminée (en g/mois).....	5
Tableau 2 : Concentration moyenne de plomb au niveau du préleveur (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$).....	6
Tableau 3 : Dépôts mensuels de plomb (en $\text{mg}/\text{m}^2/\text{mois}$)	8
Tableau 4 : Mesures de plomb dans les végétaux	10
Tableau 5 : Concentrations de plomb mesurées dans l'air.....	16
Tableau 6 : Dépôts de plomb total recueillis dans les jauges Owen durant le mois d'octobre 2005	16
Tableau 7 : Dépôts de plomb total recueillis dans les jauges Owen durant le mois de novembre 2005	17
Tableau 8 : Comparaison des mesures de dépôts effectués par l'exploitant et par l'INERIS.....	18

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Implantation des préleveurs et des jauges sur le village de bourg-Fidèle.....	15
Figure 2 : Dépôts de plomb mesurés en fonction de la distance à l'usine	18
Figure 3 : Concentrations de plomb dans les sols superficiels, mesurées en laboratoire par ICP/OES.....	21
Figure 4 : Concentrations de plomb dans les sols superficiels, mesurées in situ par XRF.....	22
Figure 5 : Concentrations de plomb entre 0 et 20 cm, mesurées en laboratoire ..	23
Figure 6 : Prélèvements de poussières par lingettes.....	25
Figure 7 : Prélèvements de poussières par à l'aide du HVS3.....	25

1 INTRODUCTION

L'environnement proche de Métal-Blanc fait l'objet d'une surveillance importante depuis 1998 et une évaluation détaillée des risques (EDR) de l'usine a été réalisée en 2000, dans le cadre de la réglementation sur les sols pollués (ANTEA, 2000). Les concentrations de sols issues des travaux menés dans le cadre de l'EDR (ANTEA 1999 a, b) et les données provenant de la surveillance menée de 2001 à 2005 ont été collectées.

Pour compléter ces données et mener à bien le travail de comparaison mesures/modèles, des mesures complémentaires, concernant principalement les dépôts au sol et les concentrations dans les sols ont été réalisées.

Cette annexe présente d'abord les données du suivi environnemental utilisées pour cette étude, puis les campagnes de mesures complémentaires sont décrites et les résultats obtenus analysés.

2 DONNEES ISSUES DU SUIVI ENVIRONNEMENTAL

A partir des données du suivi environnemental, les flux mensuels aux cheminées de l'usine et les concentrations mensuelles de plomb dans l'air ont été calculés. Ces données, ainsi que les dépôts au sol et les concentrations dans les végétaux sont reportées dans ce chapitre.

Par ailleurs, il convient de noter que des données météorologiques correspondant à la période de 2001 à 2005 ont été acquises pour modéliser la dispersion atmosphérique du plomb. Elles ne sont pas reprises ici.

2.1 FLUX CANALISES DE PLOMB EMIS PAR L'USINE

Les flux mensuels émis par chaque cheminée sont estimés à partir des mesures mensuelles effectuées à l'émission et des durées de fonctionnement des unités de production pendant le mois correspondant (Métal-Blanc, 2001, 2002, 2003, 2004 et communication personnelle).

Tableau 1 : Quantité mensuelle de plomb émise par chaque cheminée (en g/mois)

Mois	Cheminée R1	Cheminée R2	Cheminée R3	Cheminée R4	TOTAL
janv-01	1934	1488	7440	670	11532
févr-01	945	4980	16632	0	22556
mars-01	220	3231	2083	1265	6665
avr-01	92	7827	2160	3456	13018
mai-01	17484	101990	29760	6696	126264
juin-01	30600	182240	15120	432	148367
juil-01	17557	2308	1190	744	20845
sept-01	493	1408	216	1008	2615
oct-01	225	1414	3683	528	5901
nov-01	208	1181	15120	0	16284
déc-01	252	0	967	5357	6588
janv-02	133	307	959	762	2160
févr-02	83	132	38	314	565
mars-02	276	475	540	1104	2396
avr-02	1687	389	47	627	2750
mai-02	120	228	15	2195	2557
juin-02	294	91	169	54	608
juil-02	169	159	56	4346	4730
sept-02	98	0	94	5760	5952
oct-02	58	22	26	2343	2449
nov-02	258	28	98	2374	2758
déc-02	384	8	188	1613	2194
janv-03	633	2	207	314	1156
févr-03	143	6	19	179	348
mars-03	1165	48	273	27	1512
avr-03	4448	4	188	358	4999
mai-03	1499	6	320	90	1914
juin-03	3925	517	2279	1004	7724
juil-03	4914	8	25	224	5171
sept-03	53	22	26	125	227
oct-03	61	80	188	233	562
nov-03	52	36	55	166	308
déc-03	89	36	115	430	670
janv-04	9	27	25	94	154
févr-04	37	40	95	169	340
mars-04	34	124	209	344	711
avr-04	71	330	402	475	1278
mai-04	576	52	454	29	1111
juin-04	611	257	184	1643	2695
juil-04	51	338	171	452	1012
sept-04	358	250	200	434	1242
oct-04	316	470	524	115	1424
nov-04	24	568	318	363	1274
déc-04	413	253	521	575	1762
janv-05	9	159	1855	585	2608
févr-05	10	142	535	437	1124

Tableau 1 (suite) : Quantité mensuelle de plomb émis par chaque cheminée (en g/mois)

Mois	Cheminée R1	Cheminée R2	Cheminée R3	Cheminée R4	TOTAL
mars-05	384	48	1115	862	2409
avr-05	397	0	4432	2155	6984
mai-05	56	405	1197	965	2624
juin-05	311	2208	1550	1371	5439
juil-05	54	1562	585	1620	3821
sept-05	40	817	322	3487	4666
oct-05	36	6887	218	12452	19593
nov-05	95	726	267	10151	11239
déc-05	123	1346	105	1247	2821

2.2 CONCENTRATIONS MENSUELLES DE PLOMB DANS L'AIR

Les concentrations mensuelles de plomb dans l'air ont été calculées à partir des concentrations journalières (communication personnelle) mesurées en continu par un préleveur (préleveur A) situé à 120 mètres des cheminée de l'usine et géré par ATMO-Champagne (voir figure 1). Les concentrations mensuelles les jours de semaine et les jours de week-end ont également été calculées.

Tableau 2 : Concentration moyenne (moyenne arithmétique) de plomb au niveau du préleveur (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Mois	Concentration moyenne (semaine et week-end)	Concentration moyenne les jours de semaine	Concentration moyenne les jours de week-end
janv-01	1,58	0,87	3,58
févr-01	1,21	1,23	1,17
mars-01	1,82	1,92	1,58
avr-01	1,00	1,21	0,55
mai-01	2,26	2,25	2,30
juin-01	2,95	3,52	1,67
juil-01	0,65	0,70	0,52
août-01	0,15	0,19	0,06
sept-01	0,35	0,40	0,25
oct-01	0,22	0,28	0,05
nov-01	0,25	0,23	0,31
déc-01	0,26	0,31	0,17
janv-02	0,10	0,14	0,00
févr-02	0,56	0,75	0,08
mars-02	0,37	0,50	0,05
avr-02	0,21	0,24	0,16
mai-02	0,13	0,21	0,01
juin-02	0,12	0,17	0,01
juil-02	0,11	0,14	0,01
août-02	0,03	0,04	0,01
sept-02	0,03	0,04	0,01
oct-02	0,07	0,09	0,02
nov-02	0,03	0,02	0,00
déc-02	0,00	0,01	0,00

Tableau 2 (suite) : Concentration moyenne de plomb au niveau du préleveur (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Mois	Concentration moyenne (semaine et week-end)	Concentration moyenne les jours de semaine	Concentration moyenne les jours de week-end
janv-03	0,03	0,04	0,00
févr-03	0,03	0,04	0,01
mars-03	0,05	0,07	0,01
avr-03	0,05	0,05	0,05
mai-03	0,10	0,16	0,02
juin-03	0,13	0,19	0,01
juil-03	0,13	0,17	0,02
août-03	0,06	0,11	0,00
sept-03	0,06	0,07	0,00
oct-03	0,05	0,05	0,05
nov-03	0,02	0,04	0,00
déc-03	0,02	0,02	0,01
janv-04	0,10	0,13	0,00
févr-04	0,06	0,09	0,00
mars-04	0,05	0,07	0,01
avr-04	0,03	0,04	0,00
mai-04	0,02	0,04	0,00
juin-04	0,16	0,23	0,01
juil-04	0,09	0,12	0,00
août-04	0,04	0,04	0,01
sept-04	0,15	0,18	0,05
oct-04	0,06	0,10	0,00
nov-04	0,12	0,12	0,06
déc-04	0,06	0,07	0,00
janv-05	0,60	0,20	0,01
févr-05	0,02	0,03	0,02
mars-05	0,09	0,10	0,01
avr-05	0,05	0,06	0,01
mai-05	0,13	0,19	0,02
juin-05	0,16	0,21	0,02
juil-05	0,24	0,36	0,02
août-05	0,03	0,03	0,00
sept-05	0,20	0,27	0,01
oct-05	0,03	0,05	0,01
nov-05	0,17	0,24	0,01
déc-05	0,05	0,07	0,00

L'analyse statistique des concentrations atmosphérique mesurées par le préleveur a montré une concentration significativement plus faible durant les week-ends que durant les jours de semaine d'une part, et lors du mois d'août par rapport aux autres mois de l'année d'autre part. Cette information permet de relier la pollution atmosphérique à la production de l'usine, la production s'arrêtant durant le mois d'août et les week-ends depuis 2002.

2.3 MESURE DES DEPOTS DE PLOMB AU SOL

Les dépôts de poussières et de plomb au sol sont mesurés à l'aide de quatre jauges A, B, C et D mises en place et suivies par l'exploitant depuis 1998 (Métal-Blanc, 2001, 2002, 2003, 2004 et communication personnelle). L'emplacement de ces jauges est visible sur la figure 1 (cf. chapitre 3).

Tableau 3 : Dépôts mensuels de plomb (en mg/m²/mois)

Mois	jauge A	jauge B	jauge C	jauge D
janv-01	15,0	8,0	7,0	304,0
févr-01	3,0	4,0	3,0	420,0
mars-01	8,0	6,0	16,0	82,0
avr-01	11,0	4,0	30,0	151,0
mai-01	12,0	10,0	19,0	48,0
juin-01	3,0	6,0	45,0	308,0
juil-01	1,0	5,0	4,0	1,0
août-01	5,0	2,0	7,0	328,0
sept-01	5,0	17,0	46,0	381,0
oct-01	2,0	2,0	4,0	112,0
nov-01	3,0	5,0	15,0	100,0
déc-01	18,0	5,0	11,0	730,0
janv-02	18,8		8,3	314,1
févr-02		1,0	3,4	427,3
mars-02	1,1	0,7	0,7	43,9
avr-02	0,9	0,2	0,7	34,8
mai-02	2,7	0,0	1,0	24,3
juin-02	0,3	0,1	0,3	18,1
juil-02	1,8	0,4	1,9	94,1
août-02	3,5	1,7	3,8	90,6
sept-02	1,9	0,5	0,9	111,9
oct-02	1,6	1,6	2,0	54,3
nov-02	1,5	1,8		36,5
dec-02	4,0	6,7		31,0
janv-03	5,1	0,3		19,7
fev-03	2,8			22,9
mars-03	0,7	204,0	58,5	104,0
avr-03	5,0	351,4	19,7	104,7
mai-03	0,6	32,9	19,3	25,8
juin-03	1,2	13,5	4,8	42,9
juil-03	0,6	2,2	1,9	22,5
août-03	1,4	4,9	4,1	125,9
sept-03	1,2	2,7	7,2	35,4
oct-03	1,3	1,6	3,6	24,2
nov-03	0,5	0,8	2,0	1,8
dec-03	2,4	1,3	14,4	66,6
janv-04	1,5	1,1	11,0	50,8
fev-04	1,3	0,7	44,0	25,5
mars-04	2,1	0,7	1,9	35,1
avr-04	1,6	0,8	3,8	38,9
mai-04	2,1	0,8	3,2	109,4

Tableau 3 (suite) : Dépôts mensuels de plomb (en mg/m²/mois)

Mois	jauge A	jauge B	jauge C	jauge D
juin-04	1,4	1,2	4,0	111,4
juil-04	0,9	0,7	1,5	44,0
août-04	3,1	0,9	4,3	
sept-04	2,6	0,8	3,5	72,2
oct-04	1,1	0,7	16,1	8,3
nov-04	1,1	2,2	2,2	6,1
déc-04	2,1	0,7	16,0	36,9
janv-05	1,2	1,3	6,2	29,1
févr-05	5,4	15,8	14,8	50,2
mars-05	2,0	0,4	2,1	16,4
avr-05	1,8	1,6	8,0	28,9
mai-05	0,3	0,2	1,0	14,2
juin-05	1,3	1,5	3,0	63,7
juil-05				
août-05	1,0	0,6	1,9	
sept-05	0,7	0,4	2,2	83,1
oct-05	0,6	0,3	1,2	111,9
nov-05	0,5	0,5	1,3	7,8
déc-05	1,5	1,0	5,5	31,1

Ces résultats montrent que les dépôts ont nettement diminué depuis 2002, que la jauge D, située à une dizaine de mètres des bâtiments, sur le site de l'exploitant, devant une haie d'arbustes, est beaucoup plus exposée (dépôts mensuels de l'ordre de plusieurs dizaines de mg/m²) que les trois autres et que les jauges A et B sont les moins exposées (dépôts mensuels de l'ordre de 1 mg/m²).

Toutefois, il convient de souligner l'existence de valeurs aberrantes dans ce tableau (comme des concentrations ponctuellement très élevées sur la jauge A ou B) et une incertitude vraisemblablement très forte sur toutes ces données. L'utilisation de grands récipients pour collecter les dépôts peut s'accompagner de difficultés de rinçage et générer des problèmes de mesures importants (communication personnelle de M. DURIF, unité AIRE).

Une analyse plus fine basée sur des relevés mensuels est donc délicate. Malgré tout, un test a été réalisé sur les populations appariées des dépôts mesurés en août, et des dépôts médians mesurés le reste de l'année, pour voir si l'absence de production en août se traduisait par une réduction visible de l'impact. Un test de Wilcoxon, effectué sous Statistica (Statsoft), à partir des résultats obtenus pour les quatre jauges n'a pas montré de différence significative, contrairement à ce qui a été observée pour les concentrations dans l'air.

2.4 MESURE DE PLOMB DANS LES VEGETAUX

A la demande de la DRIRE, la teneur en plomb des fruits et légumes cultivés par les villageois est surveillée. Chaque année, la société GSC prélève une trentaine d'échantillons de fruits et légumes pour analyse (GSC, 2002 a, b, 2004, 2005 et communication personnelle).

Tableau 4 : Mesures de plomb dans les végétaux

jardin	distance à la barrière du site (m)	légumes	durée d'exposition du végétal au moment du prélèvement	concentration dans le sol correspondant (mg/kg)	concentration dans les végétaux (mg/kg frais)	concentration dans les végétaux (mg/kg sec)
Prélèvements du 16/7/2002						
1	85	radis	37	432	0,04	0,6
1	85	carotte	60	432	0,17	2,1
1	85	persil	60	432	1,79	19,3
1	85	salade reine de mai (forme pommée)	60	432	0,51	16,5
1	85	salade reine des glaces	45	432	0,61	15,0
1	85	groseille (côté usine)	60	432	6,77	41,6
1	85	pommier (feuille)	90	432	47,6	140,0
2	100	carotte	60	393	0,22	3,2
2	100	pommes de terre	60	393	0,02	0,1
2	100	oseille	75	393	1,89	34,8
2	100	charmille (feuille)	90	393	23,6	64,1
3	120	navet	60	167	0,02	0,3
3	120	salade laitue	37	167	0,06	2,4
3	120	salade laitue	37	167	0,02	0,9
3	120	céleri branche	60	167	0,57	5,6
3	120	noisetier (feuille)	90	167	11,8	37,4
3	120	pommes de terre	60	167	0,015	0,1
4	105	salade batavia	37	536	0,15	4,2
4	105	navet	60	536	0,03	0,4
4	105	cerisier (feuille)	90	536	5,18	16,4
4	105	cerisier (feuille)	90	536	22	68,1
4	105	frêne (feuille)	90	536	31,8	161,8
5	415	salade pain de sucre	51	408	0,07	1,6
5	415	salade laitue (forme pommée)	45	408	0,02	0,9
5	415	carotte	60	408	0,08	1,0
5	415	thym	90	408	2,52	17,3
5	415	persil	60	408	0,19	2,0
5	415	cerisier (feuille)	90	408	2,96	8,2
6	570	cerisier (feuille)	90	154	2,03	5,9
7	263	charme (feuille)	90	181	12,3	36,2

Tableau 4 (suite) : Mesures de plomb dans les végétaux						
jardin	distance à la barrière du site (m)	légumes	durée d'exposition du végétal au moment du prélèvement	concentration dans le sol correspondant (mg/kg)	concentration dans les végétaux (mg/kg frais)	concentration dans les végétaux (mg/kg sec)
prélèvement 16/7/2003						
1	85	salade	60	568	1,97	33,2
1	85	salade laitue	60	568	0,27	9,0
1	85	choux (partie pommée)	90	568	0,05	0,9
1	85	céleri branche	90	568	3,67	20,9
1	85	persil	90	568	2,16	17,1
1	85	pommes vertes	60	568	0,17	1,3
1	85	poires vertes	60	568	0,81	3,8
3	120	salade laitue	60	169	0,16	4,7
3	120	salade batavia	60	169	0,26	5,1
3	120	céleri branche	90	169	2,21	12,1
3	120	oignons	90	169	0,04	0,3
4	105	salade laitue	60	536	1,61	33,9
4	105	salade	45	536	0,44	12,4
4	105	céleri branche	90	536	4,11	24,5
4	105	cornichons	21	536	0,03	1,1
4	105	navets	60	536	0,63	8,6
5	415	salade	60	550	1,25	21,9
5	415	choux (partie pommée)	90	497	0,03	0,5
5	415	céleri branche	90	550	0,47	2,7
5	415	persil	90	550	0,2	1,2
5	415	carottes	60	601	1	8,8
7	485	salade	45	181	8,77	139,6
7	485	céleri branche	90	181	0,26	1,5
7	485	oseille	90	181	0,21	2,3
7	485	sauge	90	181	0,52	2,3
7	485	carotte	60	181	0,21	2,1
2	100	salade laitue	15	393	0,61	11,8
2	100	salade	45	393	0,61	17,0
2	100	ciboulette	90	393	1,04	7,8
6	570	salade	60	154	0,39	6,6
6	570	ciboulette	90	154	0,26	1,7
6	570	oseille	90	154	0,71	11,5
Prélèvements du 17/7/2004						
1	85	salade batavia (partie pommée)	46	477	0,008	0,3
1	85	radis noir	90	477	0,02	0,3
1	85	salade laitue	30	477	0,16	4,4
1	85	carottes	60	477	0,16	1,8
1	85	persil (abrité par la maison)	105	477	4,09	21,4

Tableau 4 (suite) : Mesures de plomb dans les végétaux

jardin	distance à la barrière du site (m)	légumes	durée d'exposition du végétal au moment du prélèvement	concentration dans le sol correspondant (mg/kg)	concentration dans les végétaux (mg/kg frais)	concentration dans les végétaux (mg/kg sec)
1	85	menthe (pousses de l'année)	90	477	1,36	6,8
2	100	échalote	90	209	0,03	0,2
2	100	pomme de terre	61	209	0,019	0,1
2	100	oseille	45	209	0,58	8,9
2	100	salade laitue	60	209	0,063	1,6
3	120	salade batavia pierre	60	127	0,19	4,7
3	120	salade laitue	60	127	0,011	0,5
3	120	navets	60	127	0,032	0,6
3	120	oignons	90	127	0,0145	0,1
3	120	céleri branche	60	127	1,01	6,2
4	105	salade batavia	45	382	0,13	4,0
4	105	céleri branche	105	382	1,97	14,7
5	415	pomme de terre	60	475	0,023	0,1
5	415	carottes	60	475	0,078	0,8
5	415	salade bowl	60	475	0,97	25,7
5	415	betterave rouge	90	475	0,039	0,3
5	415	oseille	21	475	0,23	4,0
5	415	céleri branche	105	475	0,32	2,3
6	570	salade batavia	75	154	0,077	2,6
6	570	oseille	90	154	0,1	1,8
6	570	persil	90	154	1,43	7,1
7	485	salade reine des glaces	45	183	0,27	6,2
7	485	oseille	90	183	0,21	3,6
7	485	sauge	90	183	0,22	1,1
7	485	céleri	90	183	0,14	1,3
Prélèvements du 26/07/05						
4	105	poireau	90	408	0,149	0,2
4	105	salade batavia	90	408	0,0188	0,1
4	105	salade batavia	90	408	0,104	0,4
1	85	salade batavia	75	411	0,0768	0,2
1	85	salade batavia	75	411	0,018	0,1
1	85	carottes	60	411	0,239	0,1
1	85	betterave rouge	90	411	0,4	0,2
1	85	haricots verts	90	411	0,0634	0,1
1	85	sauge	90	411	2,35	2,1
3	120	salade laitue (mi pommée)	60	118	0,0111	0,1
3	120	salade laitue	60	118	0,0726	0,2
3	120	persil (sous abri)	90	118	0,221	0,3
3	120	céleri branche (sous abri)	90	118	0,179	0,2
3	120	céleri branche	90	118	0,953	0,6

Tableau 4 (suite) : Mesures de plomb dans les végétaux						
jardin	distance à la barrière du site (m)	légumes	durée d'exposition du végétal au moment du prélèvement	concentration dans le sol correspondant (mg/kg)	concentration dans les végétaux (mg/kg frais)	concentration dans les végétaux (mg/kg sec)
2	100	salade "rouge" (mi pommée)	60	393	0,0233	0,1
2	100	salade laitue	60	393	0,116	0,4
2	100	oseille	84	393	0,792	0,8
2	100	ciboulette	90	393	0,22	0,2
5	415	salade (scarole ?)	60	311	0,0396	0,1
5	415	carottes	60	311	0,0758	0,1
5	415	persil	90	311	0,274	0,2
5	415	sauge	90	311	0,577	0,4
5	415	oseille	60	311	0,287	0,3
7	263	salade 4 saisons (mi pommée)	60	203	0,0644	0,2
7	263	salade reine des glaces (ouverte)	60	203	0,0916	0,2
7	263	oseille	24	203	1,54	1,3
7	263	céleri branche	90	203	0,0953	0,1
7	263	carottes	60	203	0,0687	0,1

3 CAMPAGNE DE MESURE DES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET DES DEPOTS DE PLOMB REALISEE PAR L'INERIS

Une campagne de mesures des concentrations atmosphériques et des dépôts de plomb au sol a été réalisée sur le village de Bourg-Fidèle durant les mois d'octobre et de novembre 2005.

3.1 MODE OPERATOIRE

3.1.1 MESURE DU PLOMB A L'ATMOSPHERE

Deux préleveurs d'air de type Partisol ont été implantés chez des particuliers en complément du préleveur A géré par ATMO-Champagne-Ardenne (voir figure 1).

Le Partisol P1 a été placé sous le vent de l'usine, dans la zone où les concentrations atmosphériques de plomb attendues sont les plus fortes, selon les résultats de la modélisation. Le Partisol P2 a été positionné à l'amont du site pour connaître le bruit de fond local du plomb dans l'air.

Les prélèvements de poussières totales ont été réalisés en continu à 1,8 mètre au dessus du sol. Les membranes des préleveurs ont été relevés toutes les semaines, d'où l'obtention de prélèvements hebdomadaires. La concentration en plomb total a été analysée par spectrométrie d'émission atomique avec torche à plasma (ICP/OES).

3.1.2 MESURE DES DÉPÔTS

Seize jauges de type Owen ont été implantées sur le site de l'usine et chez des particuliers, tel qu'indiqué sur la figure 1.

Ces jauges ont été positionnées à un mètre au-dessus du sol. Leur contenu a été collecté sur une base mensuelle, en cohérence avec les données d'émissions et de dépôts fournies par l'exploitant.

Les jauges 5 et 6 ont été positionnées au même endroit pour tester la reproductibilité des mesures. Les jauges 13, 14, 15 et 16 ont été implantées à côté des jauges A, B, C et D suivies par l'exploitant, pour vérifier la concordance des mesures entre les deux types de jauges.

Pour chacun des deux mois, un blanc de site a été réalisé à partir d'une jauge implantée sur le site et maintenue fermée.



Figure 1 : Implantation des préleveurs et des jauges sur le village de bourg-Fidèle

3.2 RESULTATS DE LA CAMPAGNE DE MESURES REALISEE PAR L'INERIS

3.2.1 MESURE DU PLOMB A L'ATMOSPHERE

Les résultats obtenus pour la mesure de plomb à l'atmosphère sont présentés dans le tableau suivant.

Tableau 5 : Concentrations de plomb mesurées dans l'air

Semaines	Préleveur	Concentration de plomb ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
du 30/09/05 au 06/10/05	P1	n.e.
	P2	0,020 +/- 0,001
du 07/10/05 au 13/10/05	P1	0,061+/- 0,003
	P2	0,045+/- 0,002
du 14/10/05 au 21/10/05	P1	0,033+/- 0,002
	P2	n.e
du 22/10/05 au 29/10/05	P2	0,067+/- 0,003
du 31/10/05 au 06/11/05	P1	0,051+/- 0,003

n.e. : non exploitable suite à des dysfonctionnements du système de prélèvement

Suite à des pannes répétées de préleveurs, il n'a pas été possible d'avoir des résultats pour les deux préleveurs chaque semaine. Quant aux mesures obtenues, elles sont soumises à suspicion. Les mesures en P1 pour les semaines allant du 14 au 21/10/05 et du 31/10 au 06/11/05 et la mesure en P2 pour la semaine du 22 au 29/10/05 paraissent très peu fiables compte tenu du faible volume d'air prélevé enregistré par le dispositif.

3.2.2 MESURE DES DÉPÔTS

Les résultats obtenus pour la mesure des dépôts de plomb sont présentés dans le tableau suivant.

Tableau 6 : Dépôts de plomb total recueillis dans les jauges Owen durant le mois d'octobre 2005

Numéro de jauge	Plomb en $\text{mg}/\text{m}^2/\text{mois}$		
1	2,7	+/-	0,1
2	11,3	+/-	0,6
3	4,8	+/-	0,2
4	2,4	+/-	0,1
5	3,4	+/-	0,2
6	3,4	+/-	0,2
7	1,48	+/-	0,07
8	0,90	+/-	0,05
9	0,75	+/-	0,04
10	0,56	+/-	0,03
11	0,29	+/-	0,01
12	0,32	+/-	0,02

Tableau 7 (suite) : Dépôts de plomb total recueillis dans les jauges Owen durant le mois d'octobre 2005

13	2,1	+/-	0,1
14	0,51	+/-	0,03
15	3,4	+/-	0,2
16	271	+/-	14

Tableau 8 : Dépôts de plomb total recueillis dans les jauges Owen durant le mois de novembre 2005

Numéro de jauge	Plomb en mg/m ² /mois		
1	2,5	+/-	0,1
2	3,6	+/-	0,2
3	6,7	+/-	0,3
4	2,6	+/-	0,1
5	2,9	+/-	0,2
6	4,1	+/-	0,2
7	1,23	+/-	0,06
8	1,17	+/-	0,06
9	0,83	+/-	0,04
10	0,41	+/-	0,02
11	< 0,28	+/-	0,01
12	0,29	+/-	0,01
13	0,93	+/-	0,05
14	0,51	+/-	0,03
15	1,35	+/-	0,07
16	138	+/-	7

Il convient de noter que le plomb n'a pas été détecté sur le blanc de laboratoire et les blancs de site.

3.3 ANALYSE DES RESULTATS

3.3.1 MESURE A L'ATMOSPHERE

Trois mesures sont disponibles pour chacun des préleveurs, mais des données sont disponibles pour les deux préleveurs sur une semaine uniquement. Ces mesures dans leur ensemble mesure ne présentent pas de différence significative. Quant aux concentrations moyennes hebdomadaires calculées à partir des concentrations mesurées par le préleveur A, un test de Wilcoxon sur échantillons appariés montre qu'elles ne sont pas significativement différentes de celles mesurées lors de cette campagne par P1 et P2.

3.3.2 MESURE DES DEPOTS

Les mesures réalisées sur les jauges 5 et 6 montrent une reproductibilité acceptable avec une différence de résultats inférieure à 1 % le premier mois et de l'ordre de 30% le second mois. Cette dernière valeur est cohérente avec les estimations d'incertitudes réalisées par l'INERIS, sur d'autres sites.

En revanche, la comparaison des mesures réalisées par l'exploitant avec celles réalisées lors de cette campagne sur les 4 points dupliqués montrent que les mesures de l'exploitant sont significativement inférieures à celles de l'INERIS. Cette différence de résultats peut être due aux différences entre les modèles de jauges employées par l'exploitant et par l'INERIS.

Tableau 9 : Comparaison des mesures de dépôts effectués par l'exploitant et par l'INERIS

Mois	Jauges	Métal-Blanc	INERIS
oct-05	A ou 13	0,59	2,1
	B ou 14	0,30	0,51
	C ou 15	1,2	3,4
	D ou 16	112	271
nov-05	A ou 13	0,55	0,93
	B ou 14	0,49	0,51
	C ou 15	1,34	1,35
	D ou 16	7,8	138

La figure suivante montre l'évolution des dépôts au sol avec la distance à l'usine, lors de la campagne de mesures réalisées par l'INERIS. Comme attendu pour des particules de diamètres importants, la décroissance des dépôts avec la distance est rapide.

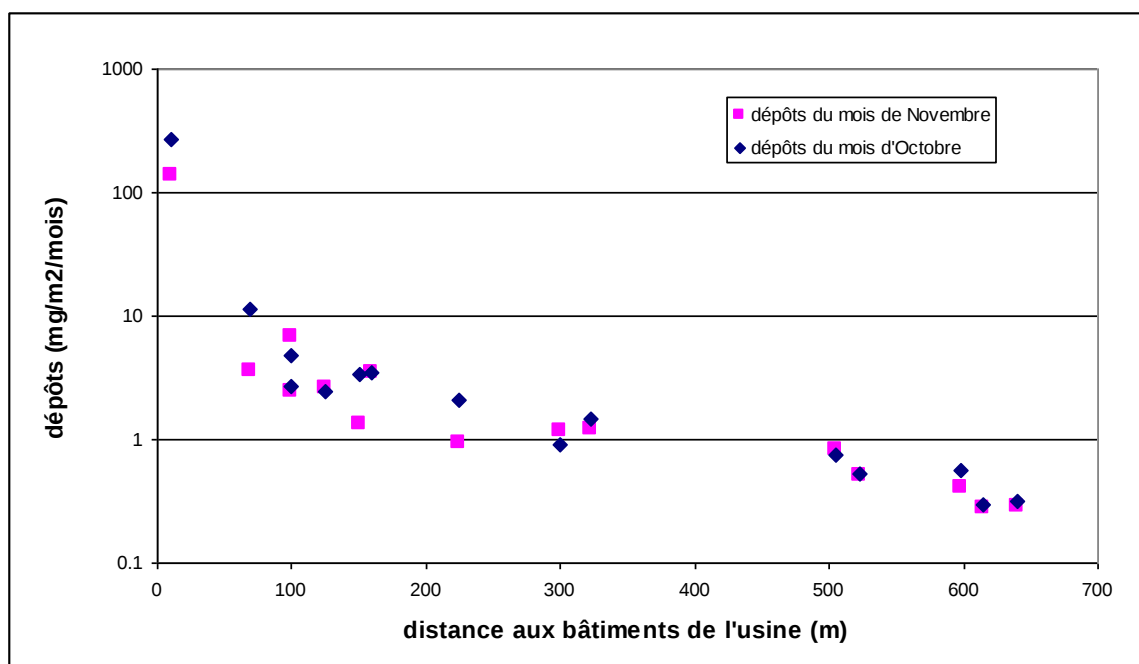


Figure 2 : Dépôts de plomb mesurés en fonction de la distance à l'usine

4 CAMPAGNES DE MESURE DU PLOMB DANS LES SOLS

Malgré le nombre élevé de prélèvements et de mesures de plomb réalisés dans les sols entre 1998 et 1999 pour le diagnostic approfondi et l'EDR de Métal-Blanc, peu de données sont réellement exploitables dans le cadre de cette étude. En effet, ces prélèvements ont principalement été réalisés sur le site de l'usine ou aux environs immédiats, alors que la prise en compte des plombémies de la population des enfants vivant à Bourg-Fidèle nécessite d'avoir une représentation de la contamination des sols de l'ensemble du village. Les prélèvements effectués correspondent majoritairement à des hauteurs de sol comprises entre 0 et 10 cm ou 0 et 20 cm. En revanche, aucune information n'est disponible concernant la contamination des premiers centimètres (de 0 à 2 cm) de sol. Or, c'est cette couche qui s'avère importante dans le cas d'une exposition par contact direct, comme l'ingestion de sol. Enfin, sur une partie des zones investiguées entre 1998 et 1999, les sols ont été excavés et un apport de terres exogènes, dont la concentration en plomb n'est pas connue, a été réalisé en 2000.

Deux campagnes de mesures ont donc été menées pour pallier le manque d'informations adéquates :

- la première a consisté à prélever 48 échantillons de sol superficiels et 12 échantillons compris entre 0 et 20 cm de profondeur. Ces échantillons ont été analysés en laboratoire par spectroscopie d'émission optique avec plasma couplé par induction (ICP/OES) ;
- la seconde campagne de mesures a été effectuée in-situ à l'aide d'un analyseur de terrain à fluorescence induite par rayon X (XRF).

Pour vérifier la concordance des données obtenues par méthode XRF avec celles obtenues par ICP/OES, des mesures complémentaires par fluorescence X ont été faites sur site au niveau des points de prélèvements de sol superficiel, ainsi que sur les sols prélevés et préparés en laboratoire pour analyse par ICP/OES.

4.1 MODE OPERATOIRE

4.1.1 PAR PRELEVEMENT

Les échantillons de sols superficiels ont été prélevés dans des zones du domaine public et dans les jardins des particuliers. Les deux premiers centimètres sous l'herbe, éventuellement présente, ont été prélevés. Pour les sols superficiels, les prélèvements ont été réalisés dans des zones n'ayant pas été retournées. Pour les prélèvements entre 0 et 20 cm, ce sont des zones bêchées de potagers qui ont été investiguées. Dans les deux cas, il s'agit d'échantillons composites constitués de cinq sous échantillons, avec un échantillon central et 4 échantillons situés à un mètre de l'échantillon central.

Par ailleurs, des prélèvements complémentaires par carottier ont été effectués de 5 cm en 5 cm de profondeur dans des zones non bêchées pour disposer de quelques profils de pollution et analyser l'évolution des teneurs en plomb jusqu'à 20 ou 30 cm de profondeur.

Les sols ont été séchés, broyés, tamisés à 250 µm et analysés par ICP/OES.

4.1.2 PAR METHODE XRF

Un mois après la campagne de prélèvements de sol, une campagne de mesures in-situ à l'aide d'un analyseur portable à fluorescence induite de type XRF a été effectuée. 148 zones réparties sur l'ensemble du village ont été investiguées.

Parmi ces zones, 24 avaient fait l'objet d'un prélèvement de sol superficiel lors de la campagne précédente. La mesure par fluorescence X a alors été réalisée à proximité immédiate du trou de prélèvement central. Selon les cas, des mesures complémentaires ont été effectuées à côté des autres points de prélèvements (emplacement des quatre autres sous-échantillons) et/ou dans le fond des cuvettes laissées par ces prélèvements.

Par ailleurs, des mesures par XRF à l'aide du même analyseur portable à l'aide du même dispositif de mesure ont été réalisées sur 23 échantillons de sols prélevés et préparés en laboratoire pour être analysés par ICP/OES.

4.2 CONCENTRATIONS DE PLOMB MESUREES DANS LES SOLS

Les échantillons de sols superficiels analysés en laboratoire par ICP/OES présentent des teneurs de plomb total comprises 35 et 1520 mg/kg (voir Figure 3). Les mesures par méthode XRF donnent des concentrations, hors site industriel, comprises entre 16 et 5400 mg/kg (voir Figure 4).

Globalement, il est possible d'observer :

- une diminution rapide des concentrations dans les sols superficiels avec la distance à l'usine, avec des concentrations de l'ordre de 1 g/kg dans les 50 premiers mètres autour de l'usine et des concentrations pouvant être inférieures à 100 mg/kg à partir de 300 mètres de distance ;
- des zones ponctuelles (situées à plus de 400 mètres de l'usine) pouvant présenter des concentrations supérieures à 200 ppm.

Quant aux prélèvements de sols de potagers, ils présentent des teneurs comprises en 41 et 440 mg/kg. Pour la suite de l'étude, les résultats obtenus sur 24 échantillons de sols de potagers, prélevés par ANTEA lors du diagnostic approfondi des sols réalisé en 1999 ou par GSC dans le cadre de la surveillance annuelle des végétaux cultivés par les particuliers, ont été ajoutés au lot de données analysées ici. Les concentrations de plomb dans les 39 échantillons ainsi rassemblés vont jusqu'à 1520 mg/kg (voir Figure 5)

Enfin, les concentrations dans les profils de sol réalisés vont de 16 à 312 mg/kg. Sur les cinq profils, deux témoignent d'une diminution nette des concentrations à partir de la surface (prélèvements réalisés sur des terrains appartenant à des particuliers). Pour les trois autres échantillons (deux issus de terrains de particuliers et un troisième effectué sur le domaine public non loin d'un arbre), cette évolution n'est pas retrouvée : les concentrations sont à peu près identiques sur le profil, des points singuliers à fortes teneurs apparaissent aussi parfois sous la surface. Ces trois profils indiquent un remaniement des sols.



Figure 3 : Concentrations de plomb dans les sols superficiels, mesurées en laboratoire par ICP/OES



Figure 4 : Concentrations de plomb dans les sols superficiels, mesurées *in situ* par XRF



Figure 5 : Concentrations de plomb entre 0 et 20 cm, mesurées en laboratoire

5 AUTRES PRELEVEMENTS ET MESURES EFFECTUES

5.1 POUSSIÈRES DEPOSEES AU SOL

5.1.1 MODE OPERATOIRE

Des prélèvements de poussières ont été réalisés dans cinq logements et dans l'école communale, par lingette d'une part (Figure 6), et par aspiration d'autre part (Figure 7).

En l'absence de normalisation précise en France, les prélèvements ont été réalisés selon les préconisations du guide américain pour les prélèvements résidentiels de plomb (US EPA, 1995), reprises dans le guide InVS (2006).

Les prélèvements par lingettes ont été réalisés à l'aide de lingettes du commerce destinées aux enfants (matériel généralement utilisé pour ce type de prélèvement comme indiqué dans le rapport de l'InVS, 2006). Un blanc a été réalisé permettant de vérifier la faible teneur du matériau en plomb.

Les prélèvements par aspiration sont réalisés à l'aide d'un appareil spécialement développé par l'USEPA dans ce but : le HVS3 (High - Volume Surface Sampleur).

Entre chaque logement, l'appareil est nettoyé au méthanol.

Dans les deux cas, l'échantillonnage est de type composite pour une meilleure représentativité de la contamination des lieux de vie des habitants. Ainsi, trois prélèvements, un dans le séjour, un dans la cuisine et un dans la chambre d'un enfant ont généralement été regroupés au sein d'un même échantillon. Les prélèvements sur surface rugueuse ou irrégulière comme la moquette n'ont toutefois pas été mélangés aux prélèvements sur surface lisse. Dans chaque pièce, la surface prélevée à l'aide des lingettes était de 0,1 m² et de 1 m² avec l'aspirateur, ces deux types de prélèvements étant réalisés à proximité l'un de l'autre.

Avant tout prélèvement, un questionnaire a été rempli pour s'assurer qu'il n'existait pas dans le bâtiment de source particulière de plomb liée à la présence de peintures anciennes ou à la pratique d'activités potentiellement génératrices de plomb par les occupants, comme la peinture sur verre ou la fusion de soldats de plomb.

Les poussières ont été minéralisées selon la norme NF EN 13657 et les lingettes selon la procédure indiquée par l'InVS. Le plomb a été dosé par ICP/MS (spectrométrie de masse avec plasma formé par induction).



Figure 6 : Prélèvements de poussières par lingettes

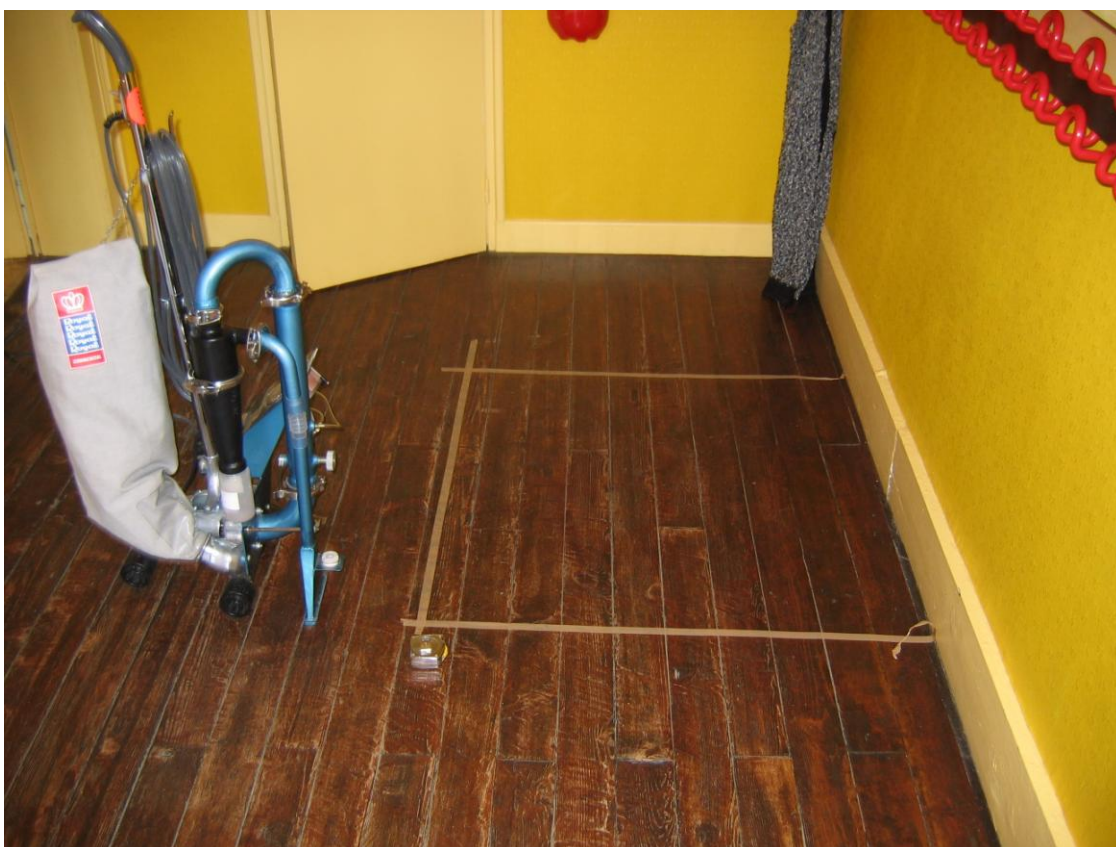


Figure 7 : Prélèvements de poussières par à l'aide du HVS3

5.1.2 RESULTATS

Les prélèvements par lingette donnent des concentrations surfaciques comprises entre 13 et 78 $\mu\text{g}/\text{m}^2$. Les concentrations massiques déterminées par prélèvement de poussières par aspiration donnent des concentrations de plomb comprises entre 93 et 647 mg/kg .

Connaissant la surface prélevée par aspiration, il est possible de ramener la concentration massique en une concentration surfacique. Les concentrations ainsi obtenues sont comprises entre 4 et 191 $\mu\text{g}/\text{m}^2$, la valeur la plus élevée correspondant au prélèvement sur moquette.

Le guide de l'InVS sur le dépistage de la plombémie indique que « les poussières récupérées par aspiration sont différentes de celles que l'on retrouve sur une lingette ». Dans la présente étude, l'absence de corrélation entre les concentrations surfaciques déterminées à partir des deux méthodes (que les mesures sur moquette soient prises en compte ou non) va dans le même sens.

En revanche, le coefficient de corrélation entre la concentration massique de plomb dans les poussières et la concentration dans le sol superficiel du jardin de ces habitations est égal à 0,73 et à 0,94 si le prélèvement sur moquette n'est pas considéré.

Tableau 5 : Concentrations de plomb dans les poussières et le sol superficiel correspondant

Bâtiment	Poussières			Sol Superficiel (mg/kg)
	Concentration massique (mg/kg de poussières)	Concentration surfacique (µg/m²)		
	Prélèvement par HVS3		Prélèvement par lingette	
Maison 1 (carrelage)	93	6	17	35
Maison 2 (moquette)	250	191	13	412
Maison 2 (carrelage)	647	109	21	412
Maison 3 (carrelage)	160	4	53	124
Maison 4 (carrelage)	107	49	78	64
Maison 5 (carrelage)	301	7	15	87
Ecole communale (carrelage)	156	24	31	

5.2 EAUX D'ARROSAGE

A titre informatif, quatre prélèvements d'eau d'arrosage ont été effectués chez des particuliers. Il s'agit d'eaux de ruissellement des toits, collectées par les particuliers dans des conteneurs pour arroser leur jardin. Ces eaux de ruissellement peuvent être beaucoup plus riches en plomb que l'eau de pluie tombant directement sur les végétaux. Cette source de contamination des végétaux n'étant jamais prise en compte dans les évaluations de risque, les mesures effectuées visaient à avoir une information préliminaire sur l'importance

de ce type de contamination par rapport à l'ensemble des transferts et des voies mises en jeu. Des valeurs comprises entre 2,8 et 20,6 µg/l ont été obtenues.

6 REFERENCES

AFNOR, NF EN 13657. - Caractérisation des déchets. - Digestion en vue de la détermination ultérieure de la part des éléments solubles dans l'eau régale contenus dans les déchets (indice de classement : X30-436)

ANTEA, Société Métal-Blanc à Bourg-Fidèle, Diagnostic approfondi de l'usine et des abords, n°A 13606/A, 1999 a

ANTEA, Société Métal-Blanc à Bourg-Fidèle, Compléments au diagnostic approfondi, n°A 17453/A, 1999 b

ANTEA, Métal-Blanc, Usine de Bourg-Fidèle (Ardennes), Evaluation détaillée des risques, n°A 19846/D, 2000

ATMO-Champagne, Résultats Bourg-Fidèle, 2001, 2002, 2003, 2004, 2005 : tableaux de données EXCEL, communication personnelle

DRIRE, Métal-Blanc à Bourg-Fidèle (08), Résultats des mesures de surveillance, mise à jour 7 Février 2005, fichier powerpoint, communication personnelle

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Note au sujet des résultats d'analyse de végétaux prélevés dans le voisinage de l'usine Métal Blanc à Bourg-Fidèle, 2000

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements du 17 Juillet 2001, 2002 a

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, campagne 2002 b

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements du 16 Juillet 2003, 2004

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements 2004, 2005

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Résultats 2005 : tableau de données, communication personnelle

InVS (Institut de Veille Sanitaire), Guide d'investigation environnementale des cas de saturnisme de l'enfant, 2006

Métal-Blanc, Rapport environnement : année 2000, 2001

Métal-Blanc, Rapport environnement : année 2001, 2002

Métal-Blanc, Rapport environnement : année 2002, 2003

Métal-Blanc, Rapport environnement : année 2003, 2004

Métal-Blanc, Flux émissions canalisées : tableau EXCEL, communication personnelle

Métal-Blanc, Résultats 2005 : tableau EXCEL (dépôts, émissions), communication personnelle

StatSoft, Statistica Kernel version 5.5, www.statsoft.com

US EPA, Office of Pollution and Prevention and Toxics Technical Programs, Residential sampling for lead, Final report, 1995

ANNEXE 2

ETUDE GEOSTATISTIQUE DU PLOMB DANS LES SOLS

TABLE DES MATIÈRES

1.	INTRODUCTION	5
2.	BREVE DESCRIPTION METHODOLOGIQUE	6
2.1	Caractérisation du comportement spatial des concentrations de plomb dans les sols	6
2.1.1	L'analyse exploratoire	6
2.1.2	La modélisation de la structure spatiale	6
2.1.3	L'estimation des concentrations	7
2.2	Définition des distributions de fréquences des concentrations de plomb dans les sols sur les parcelles où vivent les enfants	8
3.	L'ANALYSE EXPLORATOIRE DES DONNEES	9
3.1	Mesures des concentrations de plomb dans les sols superficiels	9
3.2	Mesures des concentrations de plomb dans les sols entre 0 et 20 cm de profondeur	11
4.	ESTIMATION DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES SOLS	14
4.1	Zones d'exposition étudiées	14
4.2	Couche de sol superficiel	14
4.2.1	Méthodes	15
4.2.2	Résultats	17
4.3	Couche de sol comprise entre 0 et 20 de profondeur	19
4.3.1	Méthodes	20
4.3.2	Résultats	22
5.	DEFINITION PAR SIMULATION DES DISTRIBUTIONS DE FREQUENCES, DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES PARCELLES OU VIVENT LES ENFANTS	24
5.1	Distributions des concentrations dans le sol superficiel	24
5.2	Distributions des concentrations dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur	28
6.	BIBLIOGRAPHIE	32

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Histogramme et localisation des mesures de plomb dans les sols superficiels.....	9
Figure 2 : Histogramme et variogramme de la transformée gaussienne des concentrations de plomb dans les sols superficiels	10
Figure 3 : Photographie aérienne de Bourg – Fidèle (Ardennes) et localisation des mesures superficielles (2 cm de profondeur)	10
Figure 4 : Histogramme et localisation des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur	11
Figure 5 : Histogramme et variogramme de la transformée gaussienne des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur	12
Figure 6 : Photographie aérienne de Bourg – Fidèle (Ardennes) et localisation des mesures effectuées entre 0 et 20 cm de profondeur	13
Figure 7 : Localisation géographique des zones choisies pour le calcul des distributions du plomb.....	14
Figure 8 : Modélisation des dépôts au sol du plomb à partir des émissions canalisées.....	15
Figure 9 : Statistiques des variables du KDE sur les mesures dans le sol superficiel	16
Figure 10 : Modèle des résidus utilisé dans l'estimation avec dérive externe	17
Figure 11 : Estimations des concentrations du plomb dans le sol superficiel par krigeage ordinaire.....	18
Figure 12 : Estimations par krigeage avec dérive externe des concentrations superficielles du plomb (0-2 cm).....	18
Figure 13 : Ecart - type de l'estimation de la transformée gaussienne des concentrations superficielles du plomb	19
Figure 14 : Variogrammes expérimentaux (simples et croisé) et modèle bivariable ajusté entre les concentrations dans le sol superficiel et les concentrations dans la couche de sol de 0 à 20 cm de profondeur.....	21
Figure 15 : Estimation par krigeage ordinaire des concentrations de plomb dans les sols entre 0 et 20 cm de profondeur	22
Figure 16 : Estimation par cokrigeage des concentrations de plomb dans les sols entre 0 et 20 cm de profondeur	22
Figure 17 : Ecart-type d'estimation de la transformée gaussienne des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur	23
Figure 18: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage ordinaire.....	26

Figure 19 : Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage ordinaire (Agrandissement entre 0 et 900 mg/kg)	27
Figure 20: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage avec dérive externe	27
Figure 21 : Fréquences inverses cumulées des concentrations due plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage avec dérive externe (Agrandissement entre 0 et 900 mg/kg)	28
Figure 22: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage ordinaire	31
Figure 23: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés - Simulations à partir du cokrigeage	31

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans le sol superficiel à partir du krigeage ordinaire	24
Tableau 2 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans le sol superficiel à partir du krigeage avec dérive externe	24
Tableau 3 : Résultats de l'estimation par krigeage ordinaire et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés	25
Tableau 4 : Résultats de l'estimation par krigeage avec dérive externe et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés	25
Tableau 5 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm, à partir du krigeage ordinaire	29
Tableau 6 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm, à partir du krigeage avec dérive externe	29
Tableau 7 : Résultats de l'estimation par krigeage ordinaire et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés	30
Tableau 8 : Résultats de l'estimation par cokrigeage et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés	30

1. INTRODUCTION

Une étude géostatistique a été réalisée pour estimer les concentrations de plomb dans les sols des parcelles où vivent les enfants ayant participé au dépistage de plombémie, car des mesures de plomb n'ont pu être faites directement sur ces parcelles. Deux méthodes d'estimation ont été utilisées.

Pour le travail de comparaison des plombémies par mesure et modélisation, les parcelles correspondant aux lieux d'habitation de quelques enfants ont été recherchées (cf. section 3.4.2 du corps du rapport). Afin d'intégrer dans la modélisation l'incertitude liée à la concentration de plomb dans les sols, des distributions de fréquence pour les concentrations moyennes de plomb sur ces parcelles ont été définies par simulation.

Cette annexe présente les techniques employées et les résultats obtenus.

2. BREVE DESCRIPTION METHODOLOGIQUE

2.1 CARACTÉRISATION DU COMPORTEMENT SPATIAL DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES SOLS

Les outils géostatistiques permettent d'étudier et de modéliser le comportement spatial d'une variable à partir des échantillons pour ensuite estimer la répartition de la variable en dehors des points de données.

La démarche géostatistique comporte trois phases (GeoSipol, 2005) :

- l'analyse exploratoire,
- la modélisation de la structure spatiale,
- l'estimation des fréquences.

2.1.1 L'analyse exploratoire

Le but de cette étape est d'effectuer une validation fine des données pour éviter des biais lors de l'estimation des niveaux de pollution.

L'analyse exploratoire consiste à :

- visualiser les caractéristiques de l'échantillonnage,
- examiner les relations entre méthode d'échantillonnage, milieu et teneur pour éventuellement subdiviser les données en sous-ensembles plus homogènes,
- élaborer des statistiques de base sur les teneurs,
- valider ou invalider les données présentant des anomalies,
- caractériser la variabilité spatiale des teneurs.

Cette analyse aboutit au calcul du variogramme qui est une courbe obtenue expérimentalement représentant l'écart quadratique entre les données en fonction de la distance qui les sépare. Le variogramme fournit des indications sur la régularité¹ de la variable étudiée, sur sa stationnarité², son éventuelle anisotropie³ et plus généralement sur ses caractéristiques spatiales.

2.1.2 LA MODELISATION DE LA STRUCTURE SPATIALE

Il s'agit de l'ajustement d'un modèle théorique de variogramme à la courbe expérimentale obtenue précédemment.

¹ Une variable est d'autant plus régulière que le degré de continuité du variogramme à l'origine est plus élevé.

² La variable est stationnaire lorsque la teneur fluctue autour d'une moyenne identique sur tout le champ (moyenne et variance sont constantes et la covariance est indépendante de la position sur le domaine étudié).

³ Il y a isotropie lorsque la variabilité présente les mêmes caractéristiques dans toutes les directions.

Les modèles sont des fonctions mathématiques⁴ qui permettent de définir la valeur du variogramme pour toutes les directions et pour toutes les distances.

Parmi les principaux modèles mathématiques, on peut citer le modèle « linéaire », correspondant à une variable non stationnaire, le modèle « sphérique », le modèle « exponentiel », le modèle « gaussien » et « l'effet de pépité pur » correspondant à une variable sans corrélation spatiale.

Les modèles présentent deux paramètres qui doivent être ajustés manuellement sur les variogrammes expérimentaux. Il s'agit du palier (en ordonnée) et de la portée (en abscisse). Ces valeurs représentent le point du variogramme à partir duquel il n'y a plus de corrélation entre les échantillons. La portée est une distance qui correspond à la limite de la zone d'influence d'un échantillon.

L'effet de pépité est la valeur du variogramme à l'origine. Il représente la variabilité spatiale du phénomène à une distance inférieure à la maille de reconnaissance ou d'échantillonnage. Les erreurs de mesure, les incertitudes sur la localisation des échantillons, etc. se traduisent par une augmentation de l'effet de pépité sur le variogramme expérimental. L'effet de pépité permet donc de prendre en compte les incertitudes de l'échantillonnage et de l'analyse.

Pour une même maille de reconnaissance, plus l'effet de pépité est important, moins l'estimation est précise. Pour des concentrations de polluants dans les sols, il n'est pas rare que l'effet de pépité représente plus de 50% de la valeur du variogramme aux distances d'investigation par la mesure.

Le plus souvent, plusieurs échelles de variabilité se superposent : le variogramme peut se décomposer en plusieurs structures « gigognes », avec chacune sa propre portée et son propre palier pour les composantes stationnaires.

2.1.3 L'ESTIMATION DES CONCENTRATIONS

Le krigeage ou algorithme d'interpolation en géostatistique permet d'estimer les concentrations là où elles n'ont pas été mesurées, en prenant en compte la variabilité spatiale exprimée par le modèle ajusté.

Contrairement aux méthodes conventionnelles d'interpolation (moindres carrées, inverse des distances, etc.⁵) l'algorithme de krigeage cherche à améliorer la précision de l'estimation de la teneur en polluant, en minimisant l'erreur d'estimation. De plus, le krigeage permet de fournir une carte de « l'écart-type d'estimation », fonction qui caractérise la précision de l'estimation.

⁴ Les modèles de variogramme doivent respecter certaines contraintes, par exemple, ils doivent être définis positifs dans toutes les dimensions de l'espace (cf. Chilès, 1999).

⁵ Toutes les méthodes de cartographie consistent à donner un poids plus ou moins important aux données en fonction de leur distance par rapport au point de calcul. La différence d'une méthode à l'autre se trouve dans la manière dont les poids (pondérateurs) sont calculés (GeoSipol, 2005).

2.2 DEFINITION DES DISTRIBUTIONS DE FREQUENCES DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES SOLS SUR LES PARCELLES OU VIVENT LES ENFANTS

Des simulations conditionnelles ont été générées pour estimer la courbe de fréquences cumulées des teneurs de plomb dans les zones d'exposition des enfants sélectionnés pour l'étude de comparaison des plombémies par mesure et modélisation.

Les distributions de fréquences cumulées⁶ sont établies en prenant en compte toutes les réalisations (simulations) effectuées aux nœuds des mailles d'estimation se trouvant à l'intérieur de ces parcelles.

Parmi les méthodes disponibles pour simuler les teneurs en polluants, l'algorithme des bandes tournantes⁷ (Chilès, 1999, [1]), méthode implémentée dans le logiciel Isatis, a été choisi.

Cette méthode consiste à simplifier une simulation 2D (ou 3D) en plusieurs simulations 1D le long de lignes générées aléatoirement, puis à reconstruire la simulation 2D (ou 3D) en moyennant les valeurs projetées des simulations 1D. Le seul paramètre requis pour assurer la cohérence des simulations (c'est-à-dire la reproduction de l'histogramme et du variogramme des données) est le nombre de bandes tournantes. Cet algorithme conduit à l'obtention de simulations non conditionnelles de la teneur en polluant : l'histogramme et le variogramme sont reproduits mais les données mesurées ne sont pas respectées. Le conditionnement des simulations aux données se fait alors par krigeage, et conduit aux simulations conditionnelles recherchées.

La méthode de bandes tournantes requiert que la teneur en polluant suive une distribution gaussienne, ce qui n'est généralement pas le cas : la distribution d'un polluant dans un milieu peut être dissymétrique en raison de l'existence de quelques valeurs très fortes, proches de la source de pollution.

Il est donc nécessaire d'effectuer une transformation préalable des teneurs de façon à obtenir une variable (transformée) gaussienne. Les simulations de la variable initiale sont obtenues dans une deuxième étape par transformation inverse des valeurs simulées de la variable transformée.

Dans le cas de cette étude, une transformation par anamorphose gaussienne des concentrations du plomb a été réalisée pour effectuer les estimations et les simulations des teneurs en plomb.

⁶ La distribution de fréquences décrit les valeurs que peut prendre la teneur dans la zone cible, compte tenu des données de teneur qui l'entourent et de la corrélation spatiale qui peut exister entre toutes ces données.

⁷ Voici une liste des autres méthodes permettant d'effectuer des simulations : les simulations séquentielles, la décomposition LU de la matrice de covariance, la simulation par champs de probabilité, la simulation par recuit simulé, les méthodes spectrales, etc.

3. L'ANALYSE EXPLORATOIRE DES DONNEES

Le site a fait l'objet de différentes campagnes de reconnaissance qui renseignent sur la répartition spatiale de la contamination des sols par le plomb dans les sols superficiels et entre 0 et 20 cm de profondeur (cf. section 4 de l'annexe 1).

Le logiciel de géostatistique utilisé pour cette étude est Isatis (version 6.0).

3.1 MESURES DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES SOLS SUPERFICIELS

Les données pour les sols superficiels provenant de plusieurs campagnes, où certains points ont été mesurés plusieurs fois par diverses méthodes (mesures en par spectrométrie optique avec plasma couplé par induction (ICP/OES) et mesures par fluorescence induite par rayon X (XRF)), les valeurs finalement prises en compte correspondent à la moyenne des valeurs mesurées en un point. Quatre points avec des concentrations mesurées entre 8500 et 34200 mg/kg, localisés sur le site de l'usine, ont par ailleurs été éliminés de l'échantillon, car ces valeurs extrêmes peuvent influencer le variogramme et masquer la corrélation spatiale du phénomène. Ainsi, un échantillon de 156 données est finalement disponible pour l'analyse géostatistique.

La Figure 1 montre l'histogramme des données et leur localisation géographique (voir aussi Figure 3). Les concentrations présentent une distribution asymétrique avec une queue vers les fortes valeurs. Ainsi, malgré l'existence de concentrations supérieures à 3000 mg/kg (apparaissant en bleu dans les figures), la moyenne n'est que de 308 mg/kg sur l'ensemble de l'agglomération.

Les trois concentrations supérieures à 3000 mg/kg sont regroupées dans une petite zone à l'est et très proche de l'usine.

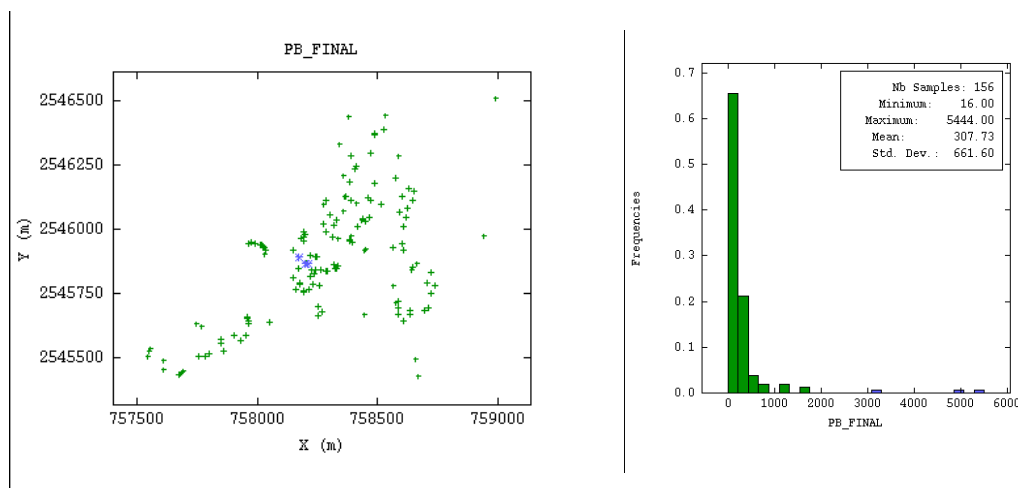
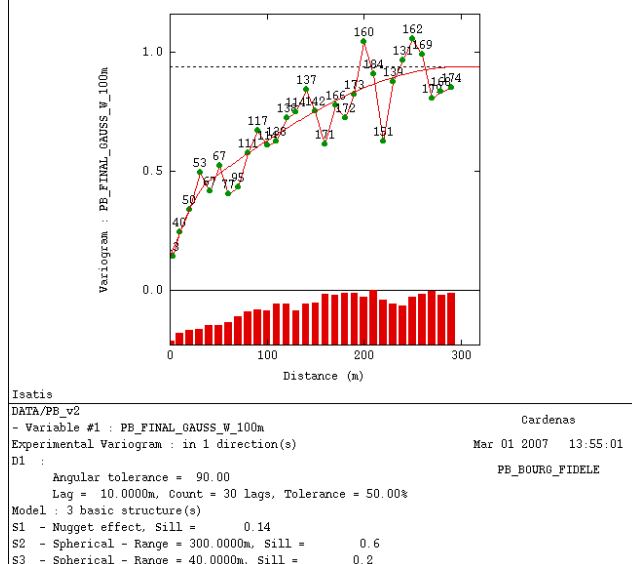
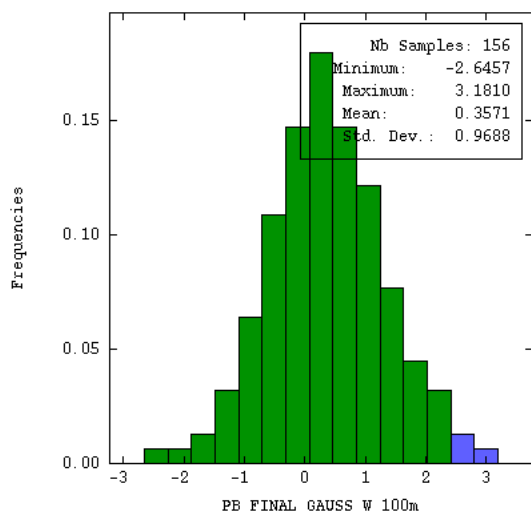


Figure 1 : Histogramme et localisation des mesures de plomb dans les sols superficiels

La Figure 2 montre l'histogramme, les variogrammes expérimental (courbe discontinue) et théorique (courbe continue) de la variable obtenue par anamorphose gaussienne des concentrations de plomb.



Nota : Les échantillons en bleu sur l'histogramme, représentent les trois valeurs avec [Pb] > 3000 mg/kg

Figure 2 : Histogramme et variogramme de la transformée gaussienne des concentrations de plomb dans les sols superficiels

La corrélation spatiale du plomb est modélisée par un effet de pépité de 0,14 et par un modèle gigogne composé d'une première structure sphérique (de palier 0,2), représentant la variabilité à petite échelle jusqu'à 40 mètres et une seconde structure sphérique (de palier 0,6) représentant la variabilité entre 40 et 300 mètres.

L'effet de pépité correspond à 15% de la somme des paliers du variogramme. Cet effet de pépité représente les erreurs de mesure et les incertitudes sur la localisation des échantillons.

Mesures (2 cm de prof.)

Pb (mg/kg)

- 16 - 250
- 251 - 500
- 501 - 750
- 751 - 1000
- 1001 - 5444

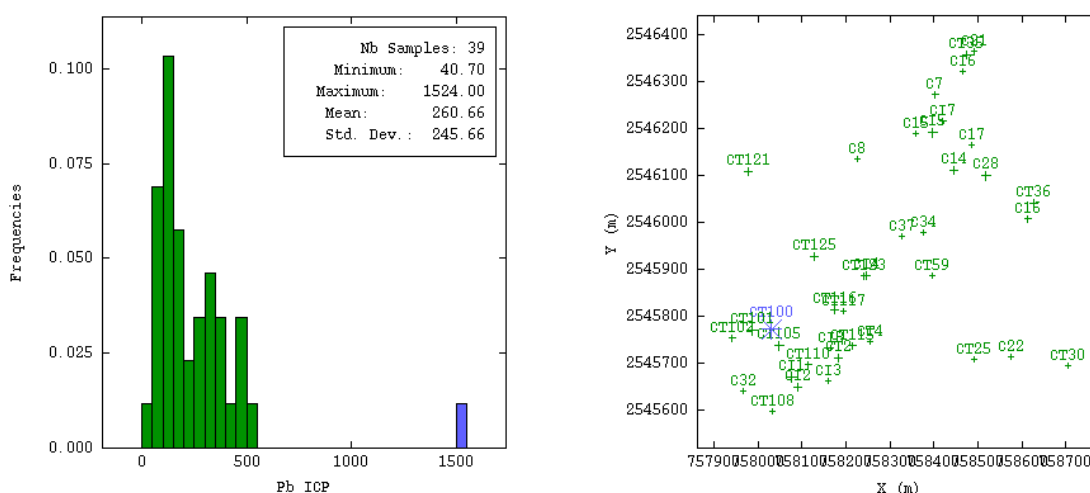


Figure 3 : Photographie aérienne de Bourg – Fidèle (Ardennes) et localisation des mesures superficielles (2 cm de profondeur)

3.2 MESURES DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES SOLS ENTRE 0 ET 20 CM DE PROFONDEUR

39 échantillons ont été prélevés entre 0 et 20 cm de profondeur dans les jardins potagers des particuliers.

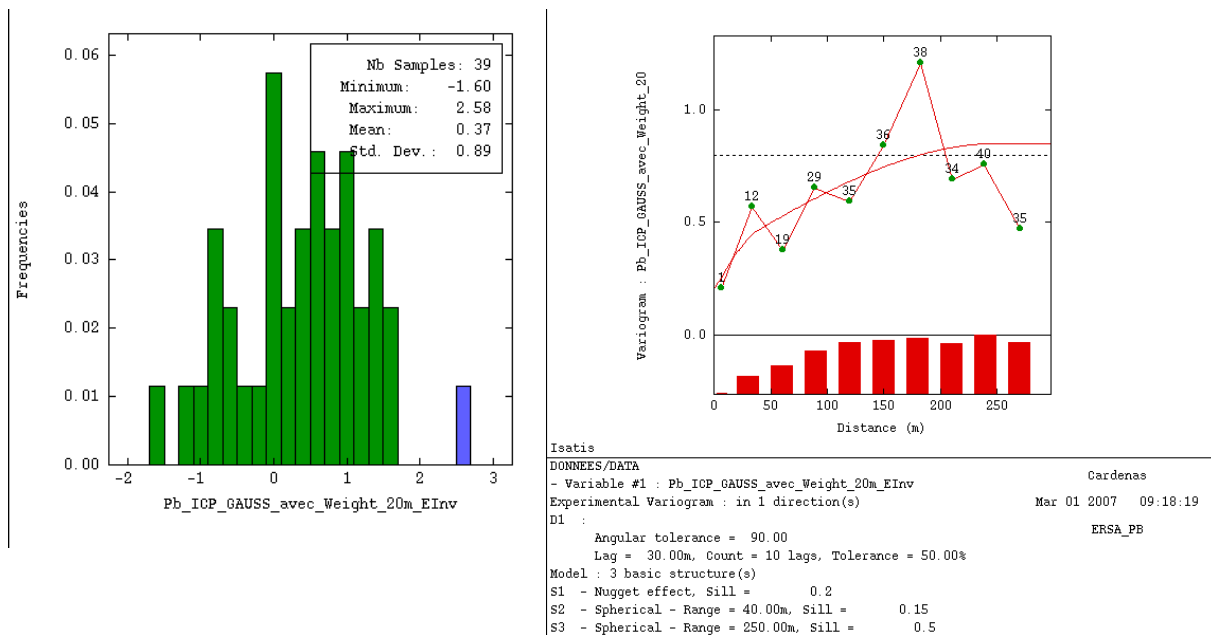
La Figure 4 montre l'histogramme des concentrations du plomb et la localisation géographique de prélèvements effectués dans les 20 premiers centimètres du sol (voir aussi la Figure 6). On observe qu'à l'exception de l'échantillon « CT100 » (qui a été conservé pour les analyses ultérieures), les concentrations de plomb sont comprises entre 41 et 500 mg/kg.



L'échantillon « CT100 » en bleu, représente la valeur maximale mesurée : 1524 mg/kg

Figure 4 : Histogramme et localisation des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur

La Figure 5 montre l'histogramme, les variogrammes expérimental (courbe discontinue) et théorique (courbe continue) de la variable obtenue par anamorphose gaussienne des concentrations de plomb.



L'échantillon « CT100 » en bleu, représente la valeur maximale mesurée : 2.58

Figure 5 : Histogramme et variogramme de la transformée gaussienne des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur

La corrélation spatiale du plomb est modélisée par un effet de pépité de 0,2 et par un modèle gigogne composé d'une première structure sphérique (de palier 0,15), représentant la variabilité à petite échelle jusqu'à 40 mètres et d'une seconde structure sphérique (de palier 0,5), représentant la variabilité entre 40 et 250 mètres.

L'effet de pépité est égal à 23% de la somme des paliers du variogramme. Comme précédemment, il représente les erreurs de mesure et les incertitudes sur la localisation des échantillons.

Mesures (20 cm de prof.)

Pb (mg/kg)

- 41 - 250
- 251 - 500
- 501 - 750
- 751 - 1000
- 1001 - 1524



Figure 6 : Photographie aérienne de Bourg – Fidèle (Ardennes) et localisation des mesures effectuées entre 0 et 20 cm de profondeur

4. ESTIMATION DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES SOLS

4.1 ZONES D'EXPOSITION ETUDIEES

Parmi les enfants étudiés, certains ont indiqué une consommation de légumes produits dans le jardin familial. Dans ce cas, leur exposition au plomb suppose la prise en compte de la contamination du sol racinaire et du sol superficiel par le plomb, sur leur zone d'exposition. Dans le cas contraire, seule la contamination de la couche de sol superficiel est prise en compte dans la modélisation. Ainsi, les polygones apparaissant en bleu sont ceux pour lesquels il a été nécessaire d'estimer les concentrations dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur et dans la couche de sol superficiel. Les polygones en rose représentent les zones pour lesquelles seule une estimation des concentrations dans le sol superficiel était nécessaire. Les zones d'exposition sélectionnées pour les comparaisons de plombémie par mesure et modélisation sont représentées sur la Figure 7).

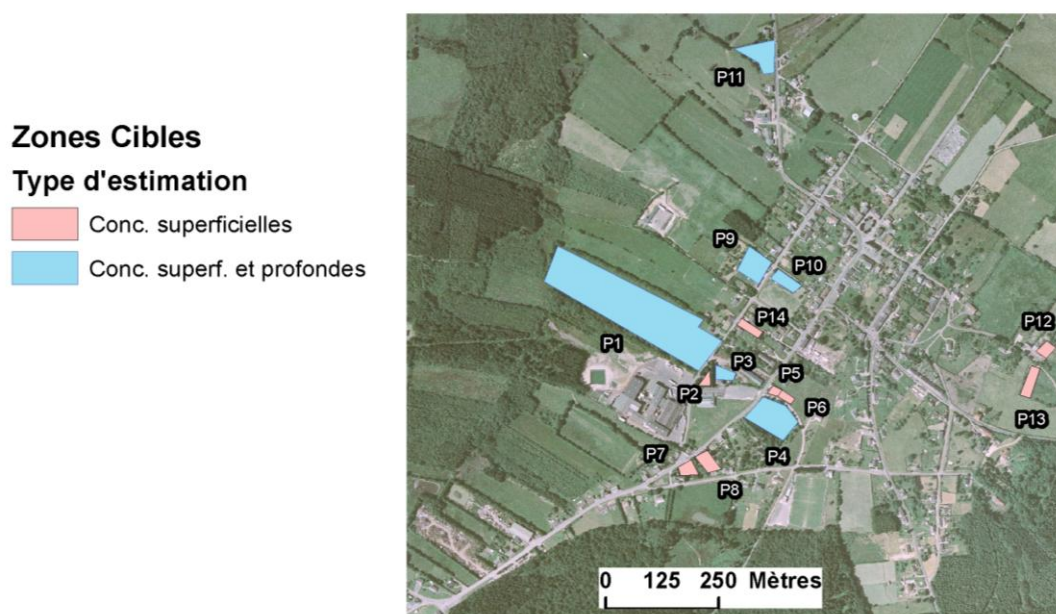


Figure 7 : Localisation géographique des zones choisies pour le calcul des distributions du plomb

4.2 COUCHE DE SOL SUPERFICIEL

Les concentrations de plomb ont été estimées selon deux méthodes. Elles ont d'abord été estimées par krigeage ordinaire, puis une variable auxiliaire a été employée pour améliorer les estimations.

4.2.1 METHODES

4.2.1.1 METHODE DU KRIGEAGE ORDINAIRE

Une interpolation par krigeage de la transformée gaussienne des 156 mesures de plomb a été effectuée à l'aide du modèle de variogramme ajusté. Les concentrations de plomb estimées ont ensuite été obtenues en appliquant l'inverse de la fonction d'anamorphose gaussienne utilisée.

Une interpolation par krigeage ordinaire en prenant en compte les points se trouvant dans un rayon de 300 mètres a été choisie. Les calculs ont été effectués sur la base d'une maille de 5 mètres de côté.

4.2.1.2 METHODE DU KRIGEAGE AVEC VARIABLE AUXILIAIRE

La géostatistique permet d'exploiter tout type d'information disponible pouvant affiner la connaissance de la variable d'intérêt.

Dans le cas de Bourg-Fidèle, la contamination des sols est liée pour l'essentiel à l'activité passée et actuelle de Métal-Blanc et les résultats de la dispersion atmosphérique des émissions, disponibles en tout point de la zone d'étude (et en particulier, dans les zones les plus éloignées de l'usine où la densité des mesures est plus faible) peuvent aider à améliorer l'estimation des concentrations de plomb dans les sols.

La Figure 8 présente la carte des dépôts de plomb au sol, estimés à partir des émissions canalisées, sur la période allant de janvier 2001 à décembre 2002.

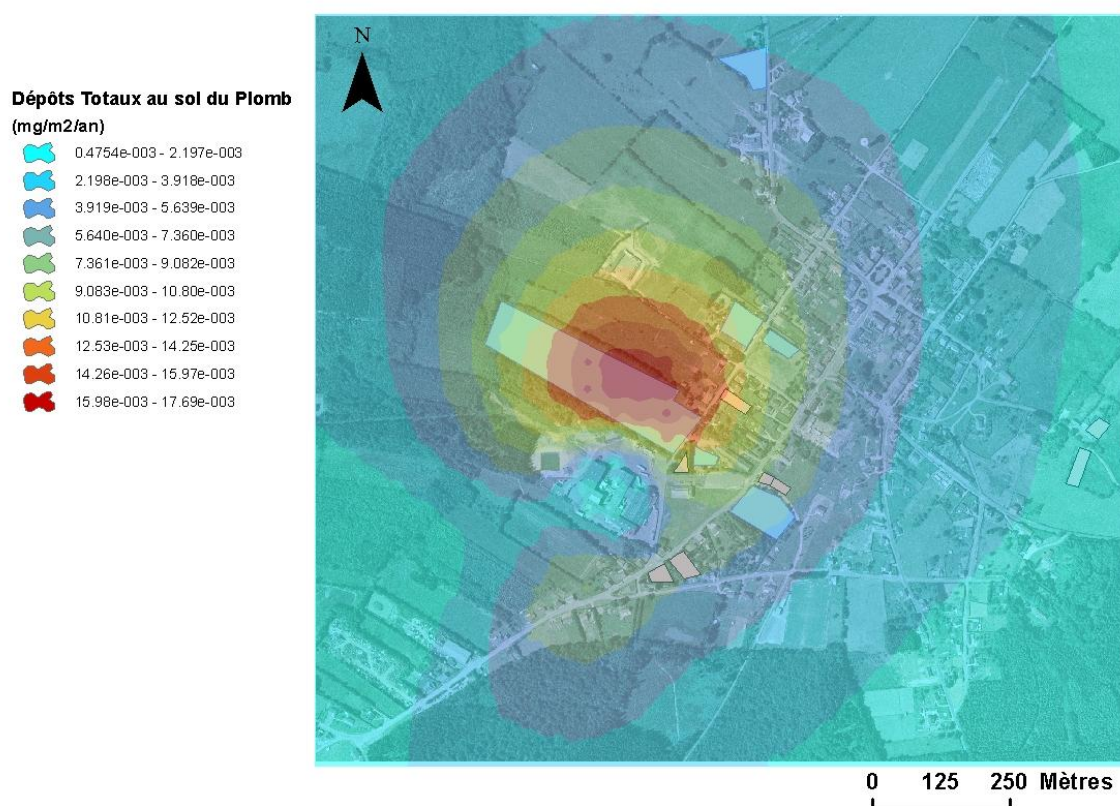


Figure 8 : Modélisation des dépôts au sol du plomb à partir des émissions canalisées

La méthode employée pour l'amélioration de l'estimation de la pollution superficielle au plomb (entre 0 et 2 cm) est le krigeage avec dérive externe (KDE, Chilès, 1999).

Dans ce type d'estimation, on suppose que la pollution au plomb dans les sols est le résultat de la superposition d'une composante non stationnaire représentée par une fonction de forme ou dérive du phénomène, et d'une composante stationnaire, encore appelée résidu :

$$\text{Plomb} = \text{Dérive} + \text{Résidu}$$

Les dépôts modélisés correspondent à la fonction de forme, car ils renseignent sur l'allure générale de la pollution superficielle, alors que les mesures donnent une information précise sur la concentration du plomb dans le sol.

De la même façon que dans le cas monovarié, une estimation des valeurs gaussiennes des concentrations du plomb a d'abord été effectuée par la méthode de la dérive externe, puis les concentrations brutes ont été obtenues en appliquant l'inverse du modèle d'anamorphose gaussienne utilisé.

Le modèle réellement employé est donc :

$$\text{Plomb gaussien} = \text{Dérive} + \text{Résidu gaussien}$$

Pour calculer la fonction de dérive, le menu « Global Trend Modelling » du logiciel Isatis (v. 7.0) a été utilisé, la procédure consiste à ajuster aux points des données un modèle du type :

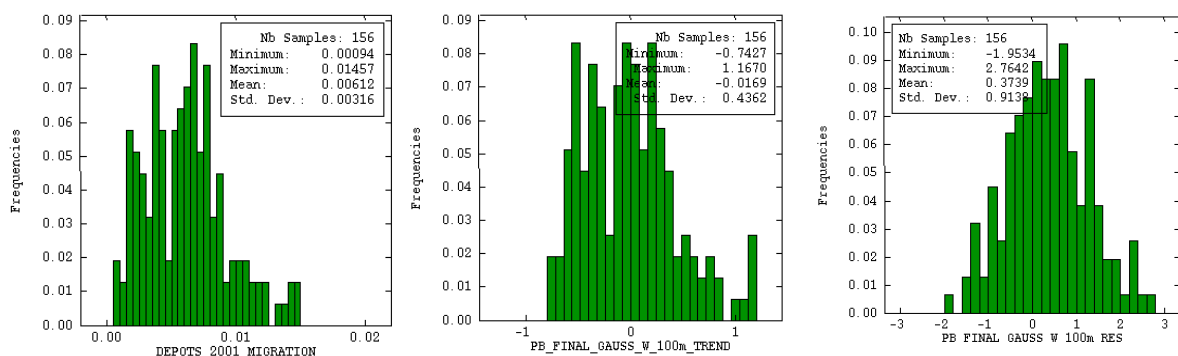
$$\text{Dérive} = A + [B * (\text{Dépôts})^{\text{Points}}]$$

Pour cela, à chaque point, on assigne la valeur de dépôt de la maille dans laquelle il est contenu. Les coefficients A (= -0,67) et B (=115,2) ont ensuite été ajustés par la méthode de moindres carrés :

$$\text{Dérive} = -0.67 + [115.2 * (\text{Dépôts})^{\text{Points}}]$$

$$\text{et } (\text{Résidu gaussien})^{\text{Points}} = (\text{Pb gaussien})^{\text{Points}} - \{-0.67 + [115.2 * (\text{Dépôts})^{\text{Points}}]\}$$

Les principales statistiques des variables rentrant dans ces calculs sont affichées dans la Figure 9.



Dépôts migrés (à gauche), fonction de dérive ajustée (au milieu) et résidus gaussiens obtenus (à droite)

Figure 9 : Statistiques des variables du KDE sur les mesures dans le sol superficiel

Si on applique à la maille d'estimation la relation obtenue au niveau ponctuel (support des prélèvements), on obtient la dérive globale de la transformée gaussienne du plomb :

$$(\text{Plomb gaussien})^{\text{Est}} = (\text{Dérive})^{\text{Maille}} + (\text{Résidu gaussien})^{\text{Est}}$$

Avec :

$$(\text{Dérive})^{\text{Maille}} = -0.67 + [115.2 * (\text{Dépôts})^{\text{Maille}}]$$

La Figure 10 montre le variogramme expérimental et le modèle de variogramme ajusté aux résidus gaussiens, il s'agit du modèle de variogramme qui a été employé lors du krigeage avec dérive externe. Ce modèle présente des caractéristiques très similaires au modèle de la transformée gaussienne du plomb.

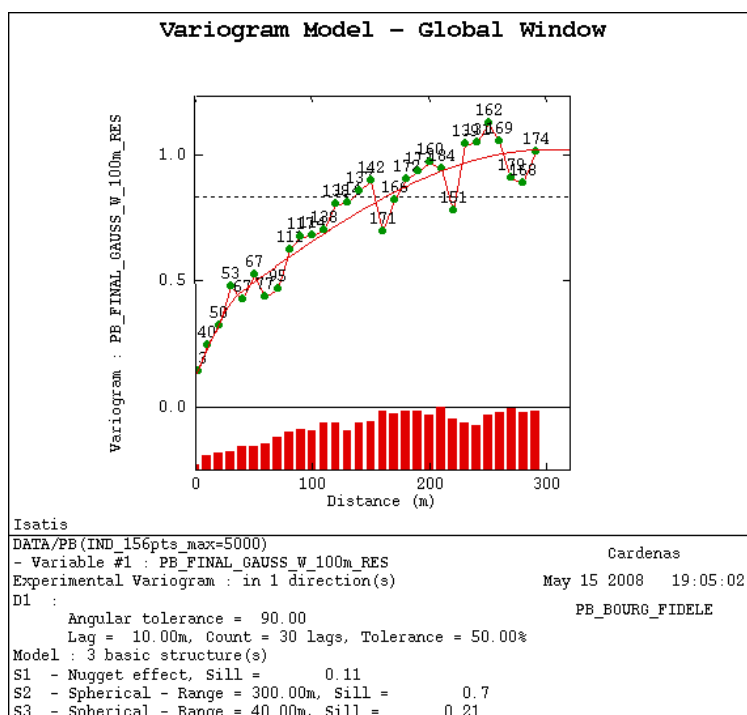


Figure 10 : Modèle des résidus utilisé dans l'estimation avec dérive externe

Il convient de noter que les estimations multivariées ont été effectuées sur la maille utilisée pour la modélisation des dépôts (6,28 mètres de côté) et qu'un voisinage unique⁸ a été choisi de façon à prendre en compte la dérive sur tous les points de prélèvement du domaine.

4.2.2 RESULTATS

La carte du plomb estimée par krigeage ordinaire (après application de l'anamorphose gaussienne) est présentée en Figure 11. Celle obtenue par transformation inverse des valeurs gaussiennes estimées par krigeage avec dérive externe est en Figure 12.

⁸ Lors du krigeage monovarié, le voisinage a été limité aux points se trouvant à une distance maximale de 300 m du point à estimer.

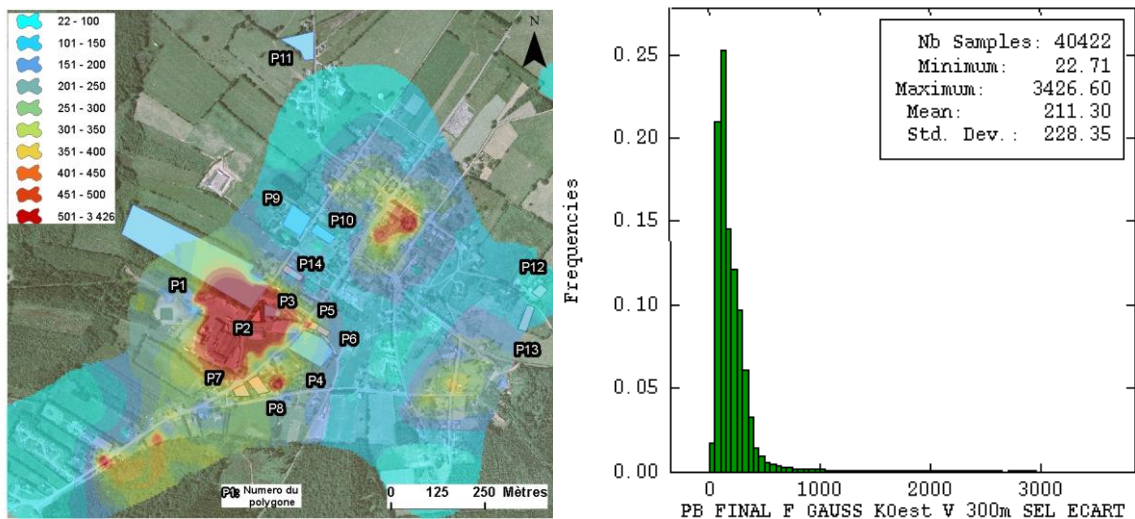


Figure 11 : Estimations des concentrations du plomb dans le sol superficiel par krigeage ordinaire

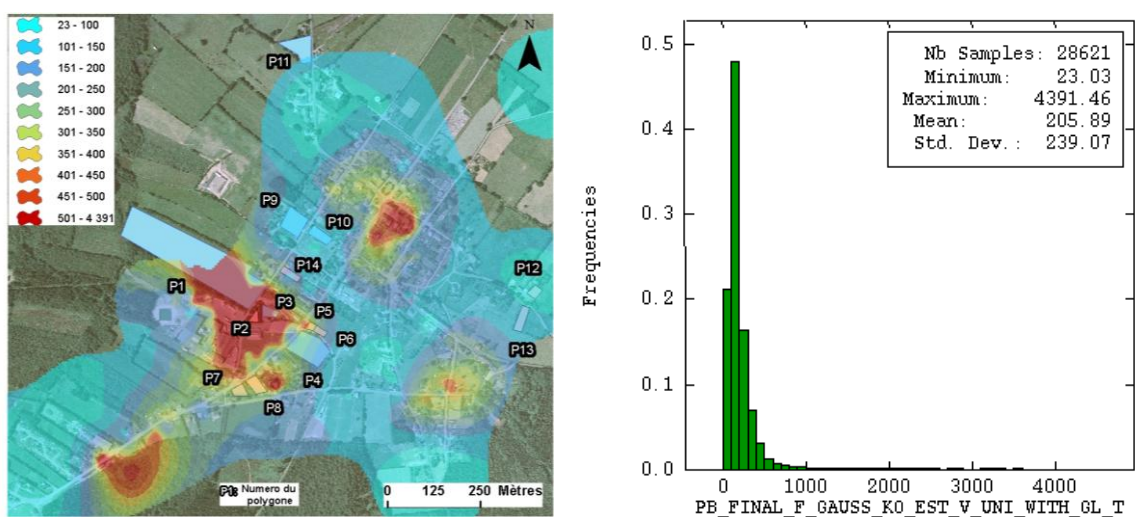
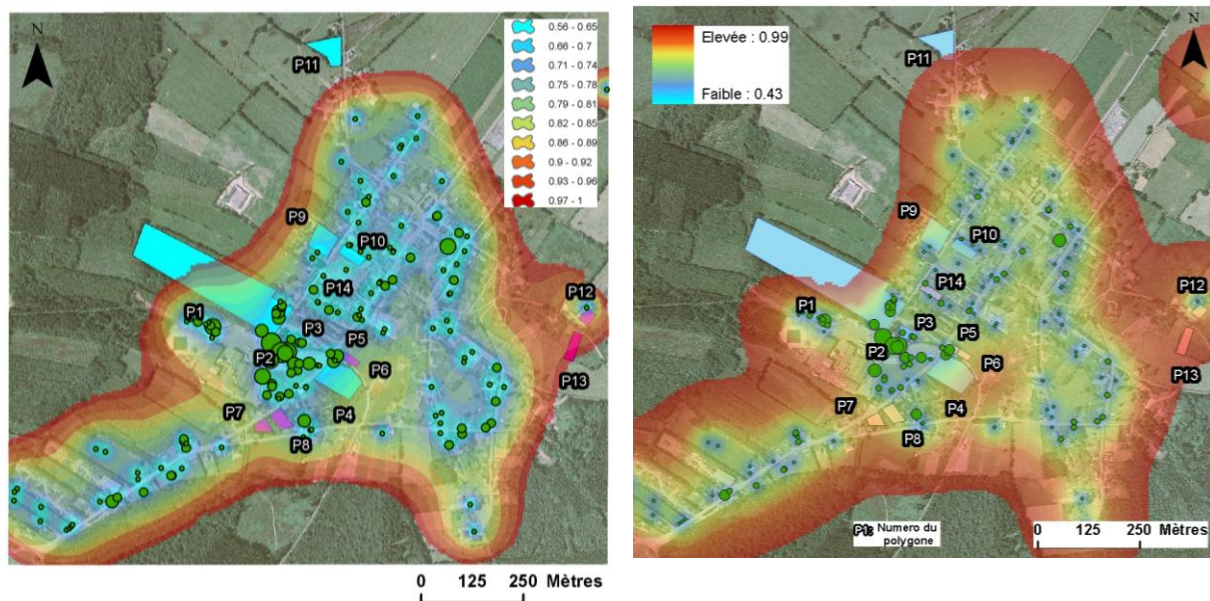


Figure 12 : Estimations par krigeage avec dérive externe des concentrations superficielles du plomb (0-2 cm)

Dans le cas des zones situées au-delà des zones de mesures (où est localisé le polygone P11 par exemple), l'absence d'échantillons ne permet pas une interpolation correcte des concentrations de plomb. C'est pourquoi, il a été décidé de limiter la carte des valeurs estimées aux seules zones pour lesquelles la précision est suffisante. Ainsi, les estimations pour lesquelles l'écart-type de krigeage de la variable gaussienne dépasse 1 ne sont pas visibles sur la carte (cf. Figure 13).



(a) Krigeage ordinaire

(b) Krigeage avec dérivée externe

Figure 13 : Ecart - type de l'estimation de la transformée gaussienne des concentrations superficielles du plomb

La Figure 13 montre aussi que le polygone P13 est localisé en bordure du domaine dans une zone où l'écart-type est le plus fort. Les estimations pour le polygone 13 doivent donc être considérées avec précaution, en particulier dans le cas du krigeage ordinaire.

Le krigeage avec dérive externe permet d'étendre légèrement la surface estimée par rapport au krigeage ordinaire (56% de la surface totale couverte par la maille d'estimation contre 50%). L'estimation de la concentration pour le polygone 13, situé en bordure du domaine est ainsi améliorée par le krigeage avec dérive externe.

Les concentrations les plus fortes sont obtenues sur le site industriel. Des concentrations fortes (supérieures à 400 mg/kg) sont également retrouvées autour du site, et de manière plus ponctuelle au nord-est du village et au sud-est, le long de la route traversant le village.

Les concentrations moyennes obtenues par les deux types d'estimation sont proches (206 contre 211 mg/kg) mais les valeurs maximales estimées par krigeage avec dérive externe sont plus proches de la valeur maximale mesurée (5444 mg/kg) que celles obtenues par krigeage ordinaire (valeurs maximales estimées par krigeage avec dérive externe et krigeage ordinaire respectivement égales à 4391 et 3427 mg/kg).

4.3 COUCHE DE SOL COMPRISE ENTRE 0 ET 20 DE PROFONDEUR

Là encore, les concentrations de plomb ont été estimées selon deux méthodes. Elles ont d'abord été estimées par krigeage ordinaire comme pour les sols superficiels puis la méthode du cokrigeage a été utilisée pour essayer d'améliorer les estimations.

4.3.1 METHODES

4.3.1.1 METHODE DU KRIGEAGE ORDINAIRE

La transformée gaussienne des concentrations entre 0 et 20 cm de profondeur a été estimée par krigeage ordinaire à l'aide du variogramme de la Figure 5 et avec un voisinage d'estimation de 300 mètres. Les concentrations de plomb ont ensuite été obtenues en appliquant l'inverse de la fonction d'anamorphose gaussienne utilisée.

Les calculs ont été effectués sur une maille de 5 mètres de côté comme pour les concentrations de plomb du sol superficiel.

4.3.1.2 METHODE DU COKRIGEAGE

Pour améliorer l'estimation des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur, l'estimation des concentrations superficielles a été exploitée.

Le cokrigeage (Chilès, 1999) est la méthode multivariable qui a été choisie pour intégrer la connaissance des teneurs superficielles dans l'estimation du plomb.

Dans cette méthode, qui est une généralisation du principe d'estimation par krigeage, l'estimation de la variable principale est obtenue par combinaison linéaire des informations des variables disponibles (principale et auxiliaires) aux points des données. L'objectif du cokrigeage est donc de déterminer les poids de cette combinaison linéaire.

Pour les concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur, le cokrigeage permet de prendre en compte les données disponibles aux points de mesure et les estimations des concentrations superficielles réalisées en chaque point de la maille d'estimation.

La résolution du système de cokrigeage requiert la connaissance de la structure spatiale de chacune des variables et du variogramme croisé qui résume la corrélation entre les deux variables en fonction de la distance. Mais, on ne dispose pas de mesure de plomb pour le sol superficiel aux points de prélèvements effectués entre 0 et 20 cm (les mesures sur le sol superficiel et entre 0 et 20 cm ne portent pas sur les mêmes points). C'est pourquoi une estimation des concentrations superficielles a d'abord été effectuée sur les 39 points où on dispose des prélèvements entre 0 et 20 cm de profondeur⁹.

De la même façon que dans le cas monovariable, l'analyse variographique et les estimations ont été effectuées sur les valeurs gaussiennes des concentrations ponctuelles. Les concentrations brutes sont calculées en appliquant, sur les estimations obtenues, l'inverse du modèle d'anamorphose gaussienne utilisé.

La Figure 14 montre les variogrammes simples et croisé, calculés sur les 39 points, ainsi que le modèle bivariable ajusté¹⁰. Les variables concernées sont la transformée gaussienne des concentrations de plomb dans les prélèvements de 0 à 20 cm de

⁹ La méthode d'estimation employée est celle du krigeage en dérive externe (KDE), à partir des 156 prélèvements superficiels avec comme variable auxiliaire les dépôts modélisés. Elle est décrite dans la section précédente.

¹⁰ L'ajustement du modèle s'effectue dans le cadre d'un **modèle linéaire de corégionalisation**. Celui-ci consiste à ajuster les différents variogrammes par une combinaison linéaire des mêmes structures de base (dans notre cas par un effet de pépite, une structure gaussienne et une structure sphérique).

profondeur d'une part, et la transformée gaussienne des concentrations superficielles estimées dans ces mêmes points d'autre part.

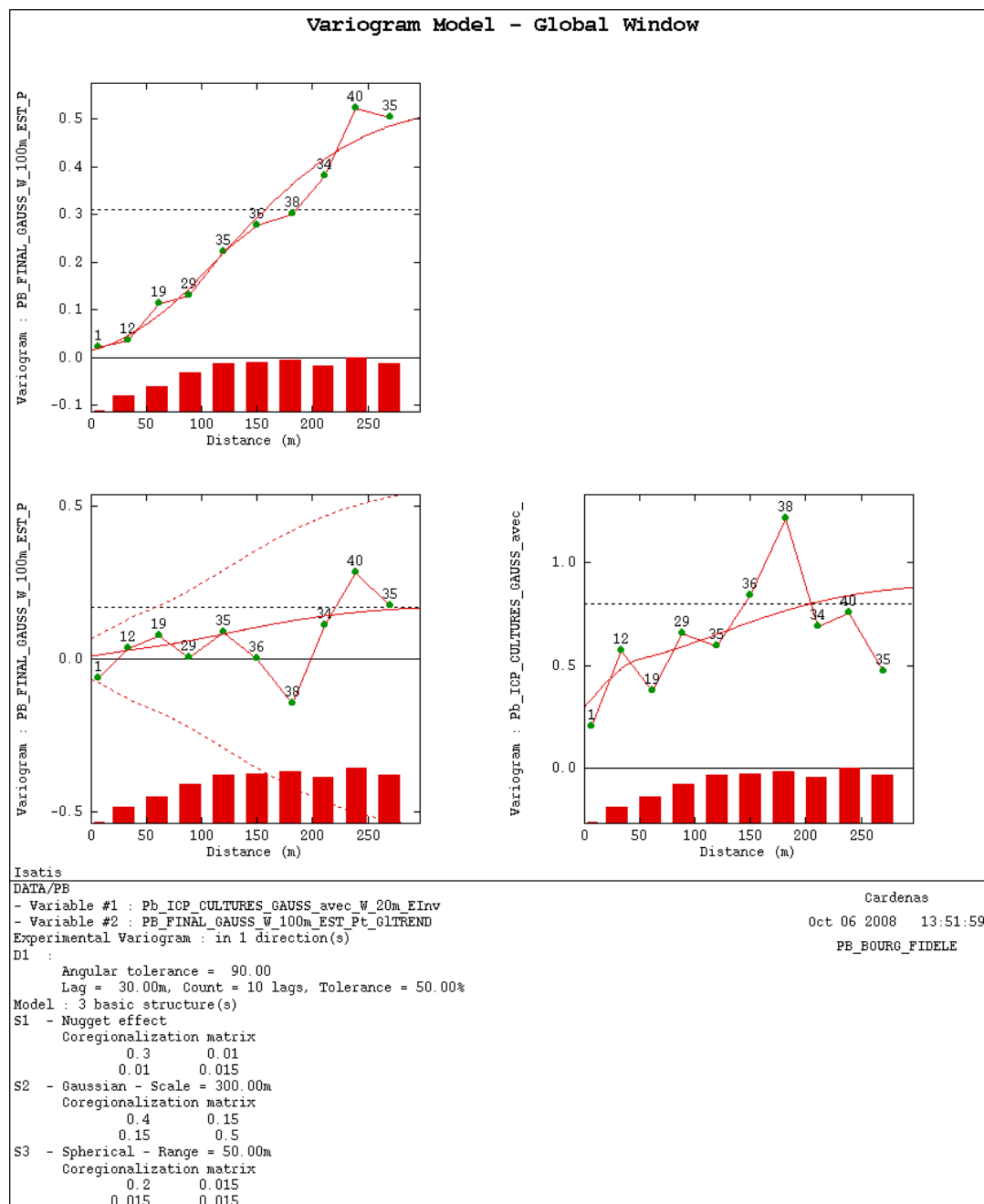


Figure 14 : Variogrammes expérimentaux (simples et croisé) et modèle bivariable ajusté entre les concentrations dans le sol superficiel et les concentrations dans la couche de sol de 0 à 20 cm de profondeur

Les concentrations ont été estimées sur la même maille que celle utilisée pour les estimations des concentrations superficielles par KDE (6,28 mètres de côté). Un voisinage concernant tous les points disponibles (unique) a été choisi de façon à prendre en compte la variable auxiliaire connue dans tout le domaine de calcul.

4.3.2 RESULTATS

La carte du plomb estimée par krigeage ordinaire (après application de l'anamorphose gaussienne) est présentée en Figure 15. Celle obtenue par transformation inverse des valeurs gaussiennes estimées par cokrigeage est en Figure 16.

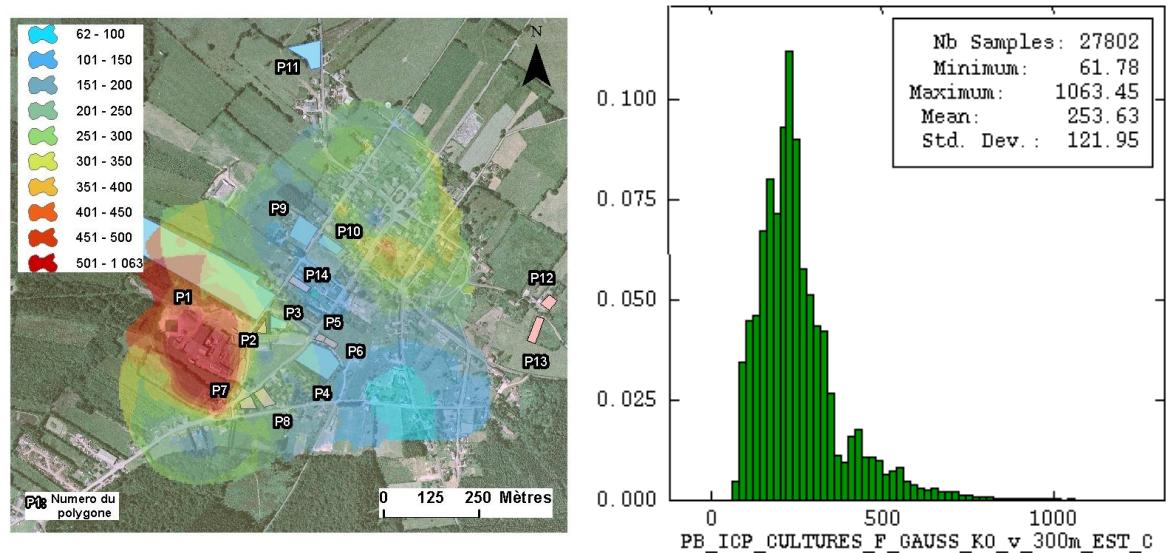


Figure 15 : Estimation par krigeage ordinaire des concentrations de plomb dans les sols entre 0 et 20 cm de profondeur

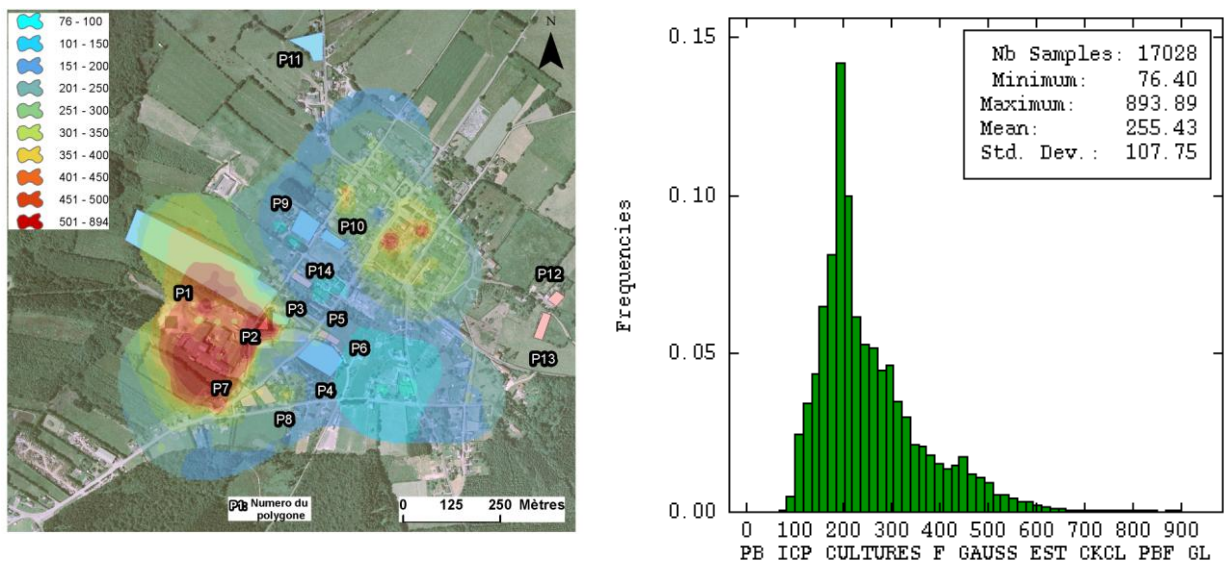


Figure 16 : Estimation par cokrigeage des concentrations de plomb dans les sols entre 0 et 20 cm de profondeur

Dans le cas des zones situées au-delà des zones de mesures (où sont localisés par exemple les polygones P11, P12 et P13), l'absence d'échantillons ne permet pas une interpolation correcte des concentrations de plomb. Pour le krigeage ordinaire, les estimations pour lesquelles l'écart-type de la variable gaussienne dépasse 1 ne sont pas visibles sur la carte (cf. Figure 17 a). Pour avoir des surfaces estimées

équivalentes, la représentation des estimations obtenues par cokrigage est visible pour un écart-type allant jusqu'à 0,9 (cf. Figure 17 b).

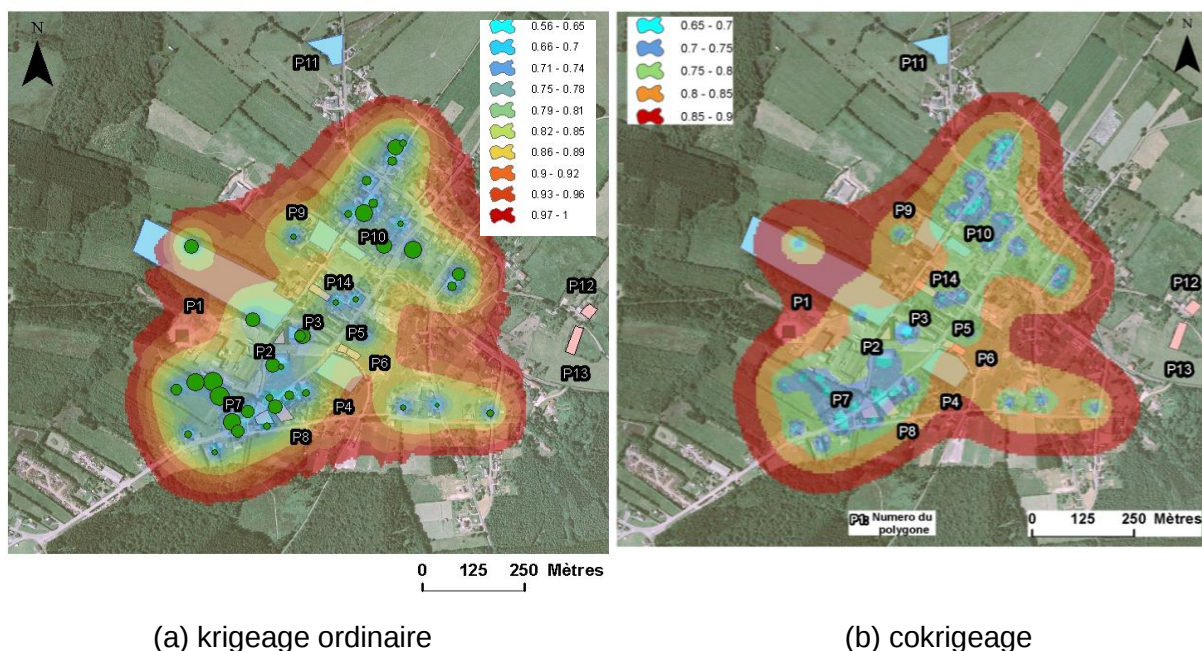


Figure 17 : Ecart-type d'estimation de la transformée gaussienne des concentrations de plomb entre 0 et 20 cm de profondeur

Compte-tenu du nombre plus faible de mesures disponibles entre 0 et 20 cm de profondeur, la surface estimée est inférieure à celle obtenue pour les sols superficiels. Dans le cas du cokrigage, la surface estimée est très légèrement inférieure à celle obtenue avec le krigeage ordinaire (33% de la surface totale couverte par la maille d'estimation contre 35%).

Les concentrations les plus fortes (supérieures à 400 mg/kg) sont localisées dans un rayon d'environ 100 mètres autour du site industriel. On observe également des concentrations supérieures à 350 mg/kg au nord-est du village. Ces deux zones sont séparées au milieu du village par une bande où les concentrations sont les plus faibles (inférieures à 200 mg/kg).

Les estimations par cokrigage atteignent des concentrations moins élevées que dans le cas de l'estimation monovariée (concentration maximale de 894 contre 1063 mg/kg) mais les concentrations moyennes sur les mailles sélectionnées restent proches (255 et 254 mg/kg).

Les statistiques des estimations montrent l'effet de lissage opéré par le krigeage. Les valeurs moyennes des mesures (261 mg/kg) et des estimations sont proches, mais les valeurs maximales estimées sont inférieures de 30 ou 40% (selon la technique d'estimation employée) à la plus forte valeur mesurée (1524 mg/kg) et les valeurs minimales estimées sont supérieures de 50 à 85% (selon la technique d'estimation employée) à la valeur la plus faible mesurée (41 mg/kg).

Le lissage des teneurs est plus important lorsque l'effet de pépite ajusté au variogramme est élevé.

5. DEFINITION PAR SIMULATION DES DISTRIBUTIONS DE FREQUENCES DES CONCENTRATIONS DE PLOMB DANS LES PARCELLES OU VIVENT LES ENFANTS

5.1 DISTRIBUTIONS DES CONCENTRATIONS DANS LE SOL SUPERFICIEL

Deux cents simulations par bandes tournantes ont été calculées afin d'estimer les percentiles de la distribution des concentrations superficielles du plomb dans les zones cibles, à partir des résultats du krigeage ordinaire et cent simulations ont été réalisées, par la même technique, à partir des résultats du krigeage utilisant comme variable externe les dépôts au sol modélisés¹¹.

Le Tableau 1 et le Tableau 2 donnent les principales statistiques issues de ces simulations sur la zone d'étude délimitée lors de l'estimation par krigeage.

Tableau 1 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans le sol superficiel à partir du krigeage ordinaire

	Nombre de points	Concentration minimale sur la zone d'étude	Concentration maximale sur la zone d'étude	Concentration moyenne sur la zone d'étude	Ecart-type
Valeur minimale simulée	40422 (101 Ha)	16,0	366	30,7	24,2
Valeur moyenne simulée		21,8	3459	220	232
Valeur maximale simulée		57,0	7000	2034	2012

Les statistiques des estimations par krigeage ordinaire sont proches des valeurs obtenues par la moyenne des simulations.

Tableau 2 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans le sol superficiel à partir du krigeage avec dérive externe

	Nombre de points	Concentration minimale sur la zone d'étude	Concentration maximale sur la zone d'étude	Concentration moyenne sur la zone d'étude	Ecart-type
Valeur minimale simulée	28621 (113 Ha)	16	786	30,4	27
Valeur moyenne simulée		21,7	3943	218	252
Valeur maximale simulée		39,4	7000	1951	1926

¹¹ Les temps de calcul très longs dans le cas d'un modèle de krigeage avec dérive externe ont conduit à réduire le nombre de simulations réalisées, mais la pratique montre que 50 simulations à partir de la méthode des bandes tournantes suffisent à obtenir des résultats satisfaisants.

La moyenne des simulations donne, avec les deux types de krigeage, des concentrations en moyenne géographique sur la zone d'étude qui sont très proches, mais la concentration maximale sur la zone d'étude est plus forte dans le cas multivariable.

Pour le calcul des distributions dans les polygones, représentant les parcelles où vivent les enfants sélectionnés, on a d'abord identifié les mailles se trouvant à l'intérieur de chaque polygone, puis on a calculé pour chaque simulation la moyenne spatiale des concentrations dans le polygone, de façon à n'obtenir qu'un jeu de x simulations pour chaque polygone.

Le Tableau 3 et le Tableau 4 donnent les statistiques des simulations de la concentration moyenne dans chaque polygone. La première ligne de ces tableaux affiche en plus la concentration moyenne spatiale estimée par krigeage, pour chaque polygone.

Tableau 3 : Résultats de l'estimation par krigeage ordinaire et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés

Moyenne spatiale des estimations	P1	P2	P3	P4	P5	P6	P7	P8	P9*	P10	P12	P13	P14
Méthode : KO	455	2 581	757	258	345	229	350	356	115	109	76	118	168
Statistiques des 200 simulations	P1	P2	P3*	P4*	P5	P6	P7	P8	P9	P10	P12	P13	P14
Valeur Minimale	137	472	259	97	111	43	75	83	39	48	18	21	85
Quantile 2,5	158	702	306	107	139	70,5	107	116	49	60	26	26	97
Quantile 50,0	367	2542	586	211	256	162	224	278	102	105	71	96	160
Valeur Moyenne	509	2672	645	235	320	198	362	388	110	107	79	146	161
Quantile 97,5	1585	4874	1393	563	1078	672	1679	1472	223	182	182	891	260
Valeur Maximale	1808	5832	1799	755	1514	1221	3489	3785	326	256	206	1379	278
Ecart - type	354	1172	275	109	209	144	400	374	43	31	39	183	38

Nota : Les estimations du Polygone P1 correspondent aux cellules où l'écart-type d'estimation est inférieur à 1

Tableau 4 : Résultats de l'estimation par krigeage avec dérive externe et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés

Moyenne spatiale des estimations	P1	P2	P3*	P4	P5	P6	P7	P8	P9	P10	P11	P12	P13	P14
Méthode : KDE (dérive : modélisation des dépôts transformée)	552,8	3077,1	785,7	231	348,5	228,9	318	360,7	120	108,7	137,3	82,2	115,4	170,8
Statistiques des 100	P1	P2	P3*	P4	P5	P6	P7	P8	P9	P10	P11	P12	P13	P14
Valeur Minimale	175,7	494,7	308,2	63,1	159,6	56,8	67,1	81,5	52,0	66,3	20,3	22,1	25,9	87,6
Quantile 2,5	200,7	1019,6	325,7	106,7	162,7	68,2	75,0	108,3	56,6	69,2	24,6	28,1	30,3	110,5
Quantile 50,0	684,4	2918,0	789,8	205,7	297,8	193,4	220,5	289,3	112,0	108,9	94,8	80,1	92,1	167,7
Valeur Moyenne	838,9	2964,0	846,9	241,8	385,0	212,4	305,1	367,8	128,6	112,9	143,4	83,8	110,4	178,2
Quantile 97,5	2593	5584	1885	708	1360	522	1145	1168	498	191	937	166	352	321
Valeur Maximale	3217	5734	2468	897	1480	1522	2335	1985	736	300	992	171	390	379
Ecart-type	596,9	1230,8	383,6	136,5	264,7	156,1	278,3	271,4	84,0	30,4	160,5	33,9	72,3	48,0

Nota : Les estimations des polygones P1 et P11 prennent en compte toutes les mailles qu'ils recouvrent.

Les polygones P2, P3, P1, localisées près de l'usine présentent les statistiques les plus fortes.

Par ailleurs, les valeurs simulées pour les polygones 1, 2, 3 et 5 sont plus élevées à partir du krigeage avec dérive externe. A l'inverse celles obtenues pour le polygone 7 sont plus faibles. Par ailleurs, on note que la distribution obtenue pour le polygone 13 est beaucoup moins étendue, l'utilisation de la variable auxiliaire ayant permis de réduire les incertitudes d'estimation, comme déjà indiqué à la section 5.1.

Les figures suivantes montrent l'inverse des distributions de fréquences cumulées des concentrations moyennes de plomb dans le sol superficiel de chaque polygone. Ces courbes représentent la probabilité que les concentrations moyennes sur les zones cibles soient supérieures ou égales aux valeurs de concentration indiquées en abscisse de la courbe. Par exemple, d'après les simulations faites à partir du krigeage ordinaire la probabilité que la concentration moyenne soit supérieure à 800 mg/kg est d'environ 5% pour le polygone 5, de 10% pour le polygone 8 et de 99% pour le polygone 2.

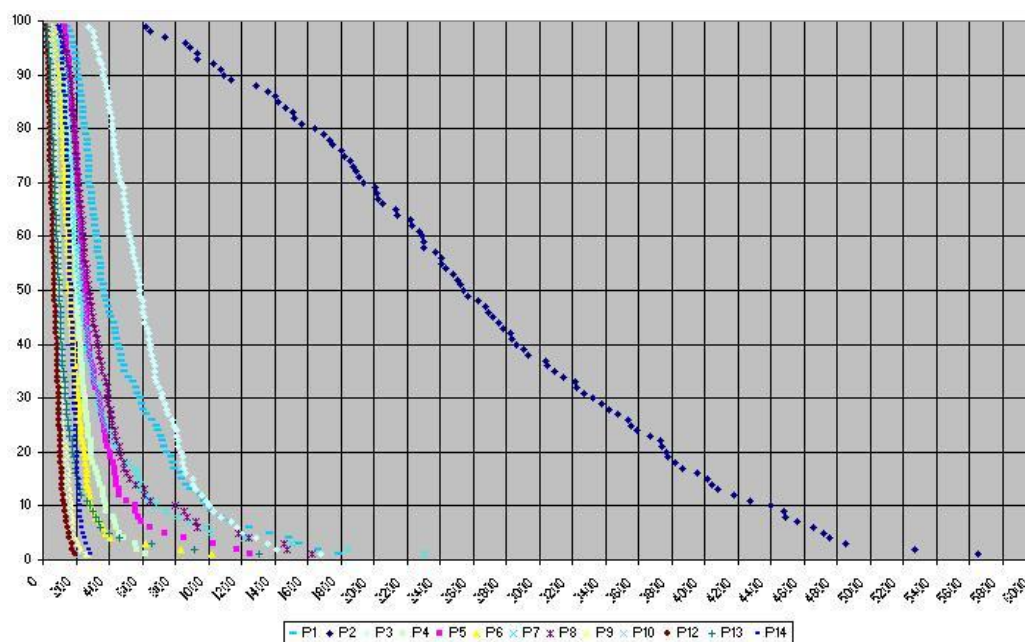


Figure 18: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage ordinaire

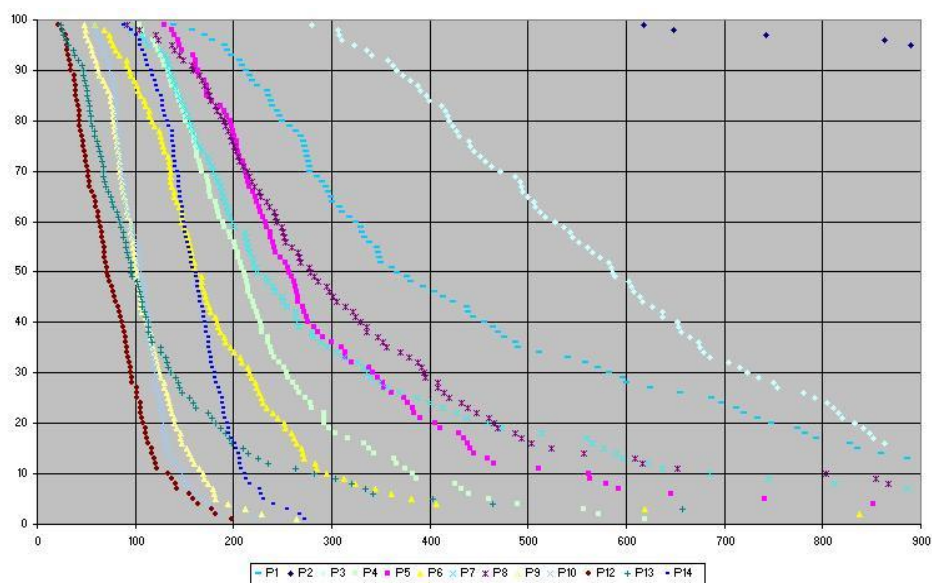


Figure 19 : Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage ordinaire (Agrandissement entre 0 et 900 mg/kg)

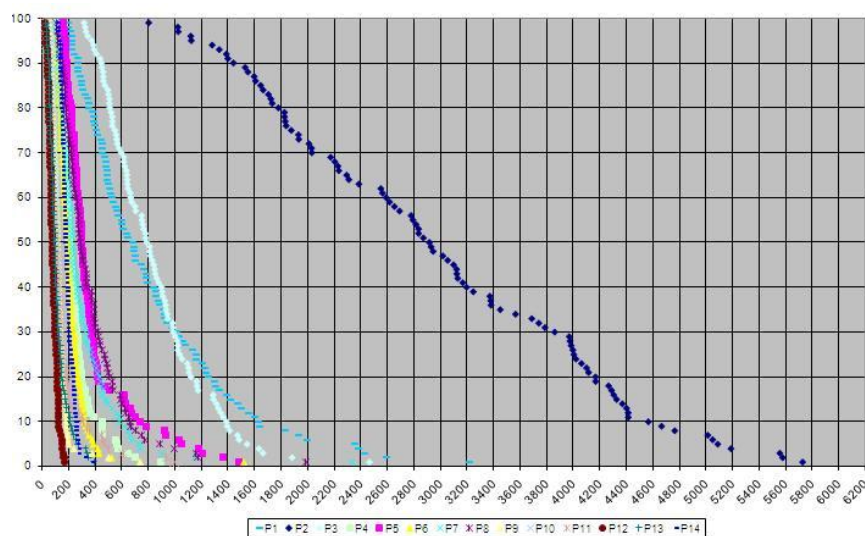


Figure 20 : Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage avec dérive externe

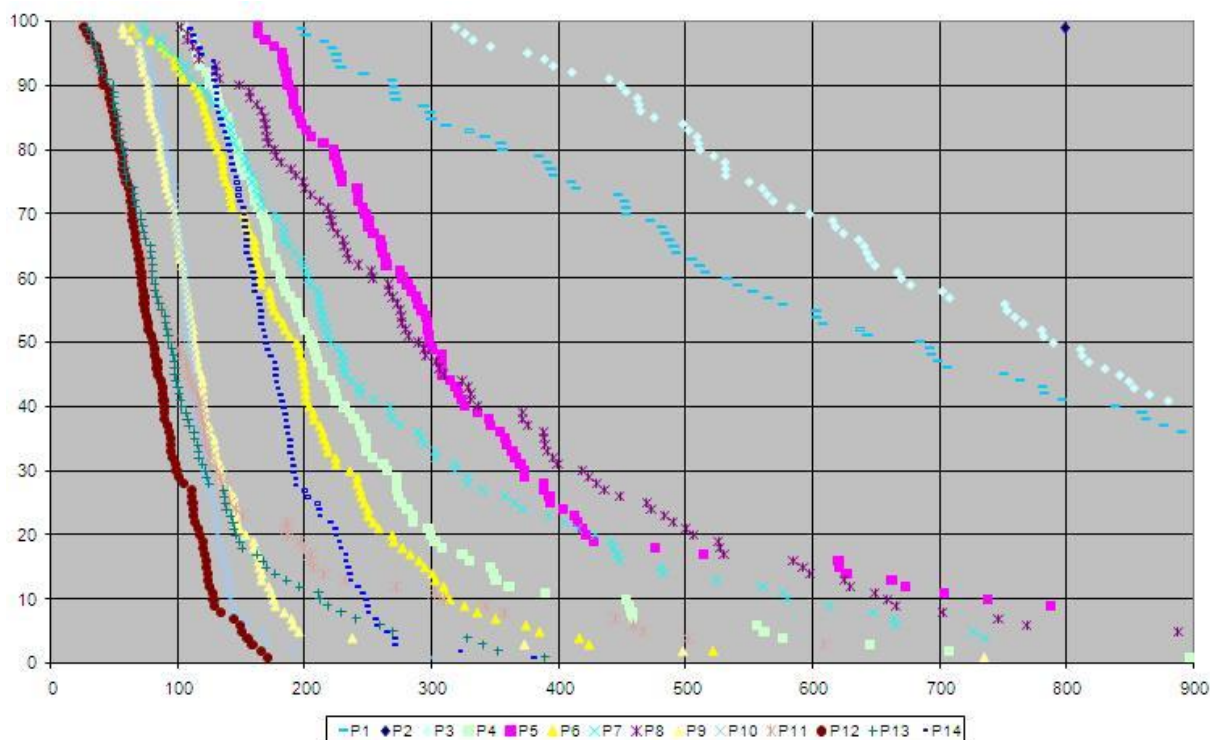


Figure 21 : Fréquences inverses cumulées des concentrations due plomb dans le sol superficiel des polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage avec dérive externe (Agrandissement entre 0 et 900 mg/kg)

On remarque que la courbe représentant le polygone P2 s'écarte ostensiblement des autres. Ces figures montrent également que les distributions de concentration pour les polygones 1 et 3 (et pour les polygones 2 et 5 dans une moindre mesure) obtenues à partir du krigeage avec dérive externe sont décalées vers la droite par rapport à celles issues du krigeage ordinaire. L'inverse peut être observé pour le polygone 7. Enfin, la queue de distribution pour le polygone 13 est beaucoup plus réduite.

5.2 DISTRIBUTIONS DES CONCENTRATIONS DANS LA COUCHE DE SOL COMPRISE ENTRE 0 ET 20 CM DE PROFONDEUR

Cinq cents simulations par bandes tournantes ont été calculées afin d'estimer les percentiles de la distribution des concentrations superficielles du plomb dans les zones cibles, à partir des résultats du krigeage ordinaire et cent simulations ont été réalisées, par la même technique, à partir des résultats prenant en compte les estimations du plomb superficiel comme covariable.

Le Tableau 5 et le Tableau 6 donnent les principales statistiques issues de ces simulations sur la zone d'étude délimitée lors de l'estimation par krigeage.

Tableau 5 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm, à partir du krigeage ordinaire

	Nombre de points	Concentration minimale sur la zone d'étude	Concentration moyenne sur la zone d'étude	Concentration maximale sur la zone d'étude
Valeur minimale simulée	27 802 (69,5 Ha)	0	156	20,2
Valeur moyenne simulée		58,4	1061	254
Valeur maximale simulée		134	2000	1581

On peut noter que les statistiques des estimations par krigeage ordinaire sont très proches des valeurs obtenues par la moyenne des simulations

Tableau 6 : Statistiques des simulations des concentrations de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm, à partir du cokrigeage

	Nombre de points	Concentration minimale sur la zone d'étude	Concentration maximale sur la zone d'étude	Concentration moyenne sur la zone d'étude	Ecart-type
Valeur minimale simulée	17 028 (67 Ha)	0	215	38,5	23,1
Valeur moyenne simulée		71	917	246	104
Valeur maximale simulée		167	2000	1222	445

Comme pour les sols superficiels, les distributions des concentrations moyennes dans les polygones sélectionnés ont été déterminées.

Le Tableau 7 et le

Tableau 8 donnent les statistiques des simulations pour chaque polygone où la concentration de plomb entre 0 et 20 cm (sol racinaire) doit être définie.

Tableau 7 : Résultats de l'estimation par krigeage ordinaire et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés

Moyenne spatiale des estimations	P1	P3	P4	P9	P10
Méthode : KO, Rayon Voisinage = 300m	358,7	292	195	170	207
Statistiques des 500 simulations	P1	P3	P4	P9	P10
Valeur Minimale	138,5	109,3	46,2	33,7	47
Quantile 2,5	163,9	140,8	70,1	64,1	75,5
Quantile 50,0	338,5	256,5	165,7	144,2	171,1
Moyenne	358,6	275,5	186,6	164,6	197,1
Quantile 97,5	685,4	553,6	411,7	380,6	486
Valeur Maximale	906,8	649	806,8	614,8	776,5
Ecart - type	133,9	96,8	93,3	80,3	104,9

Nota : Les estimations du Polygone P1 correspondent aux cellules sélectionnées où l'écart-type d'estimation est inférieur à 1.

Tableau 8 : Résultats de l'estimation par cokrigeage et des simulations associées de la concentration moyenne de plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés

Statistiques des Estimations Moyennes	P1	P3	P4	P9	P10	P11	P13
Méthode : CK avec les estimations du Pb superficiel	366	328	176	167,2	185	205	196
Statistiques des 100 simulations	P1*	P3	P4	P9	P10	P11*	P13*
Valeur Minimale	173,4	146,3	57,1	45,8	72	72,3	44,2
Quantile 2,5	176,1	149,5	58,8	64,7	81,2	76,7	54
Quantile 50,0	330,8	284,42	153,9	151,1	153,4	172,6	165
Valeur Moyenne	352,5	305,66	161,5	159,4	164,7	204,6	184,5
Quantile 97,5	634,3	543,53	312	316,4	317,9	620,6	451,8
Valeur Maximale	797,3	546,65	393,4	388	677,9	718,6	548,3
Ecart - type	123	103,48	67	63,3	74,4	126,1	99,1

Nota : Les statistiques des polygones P1, P11 et P13 prennent en compte toutes les mailles qu'ils recouvrent.

Pour les polygones P1, P3 et P4, localisés près de l'usine, les statistiques des estimations et simulations des concentrations dans le sol racinaire (entre 0 et 20 cm de profondeur) sont plus faibles que celles du sol superficiel présentées précédemment. En revanche, pour les polygones P9 et P10, qui sont un peu plus éloignés de l'usine, les statistiques des estimations et simulations des concentrations du sol racinaires sont plus élevées.

La Figure 22 et la Figure 23 montrent l'inverse des distributions de fréquences cumulées des concentrations moyennes du plomb pour chaque polygone entre 0 et 20 cm de profondeur.

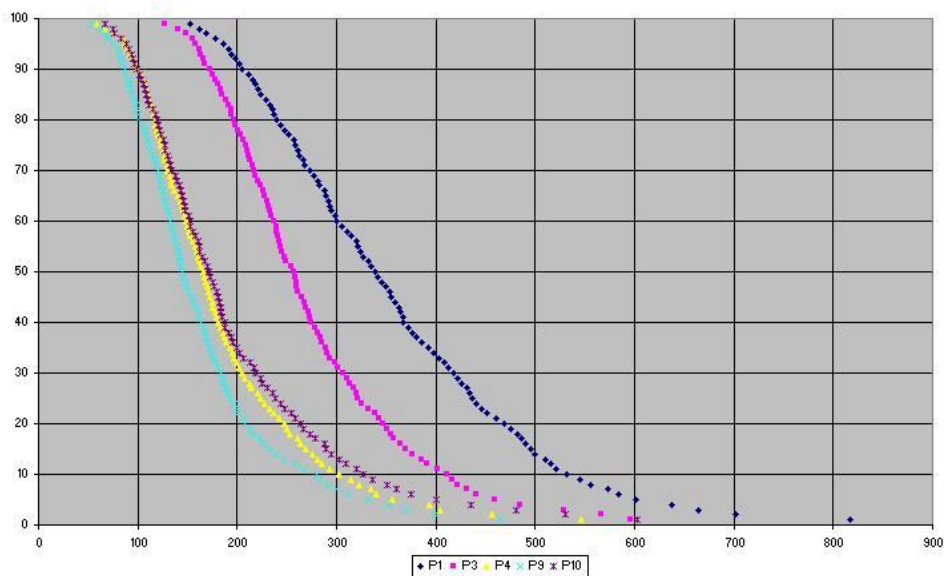


Figure 22: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés - Simulations à partir du krigeage ordinaire

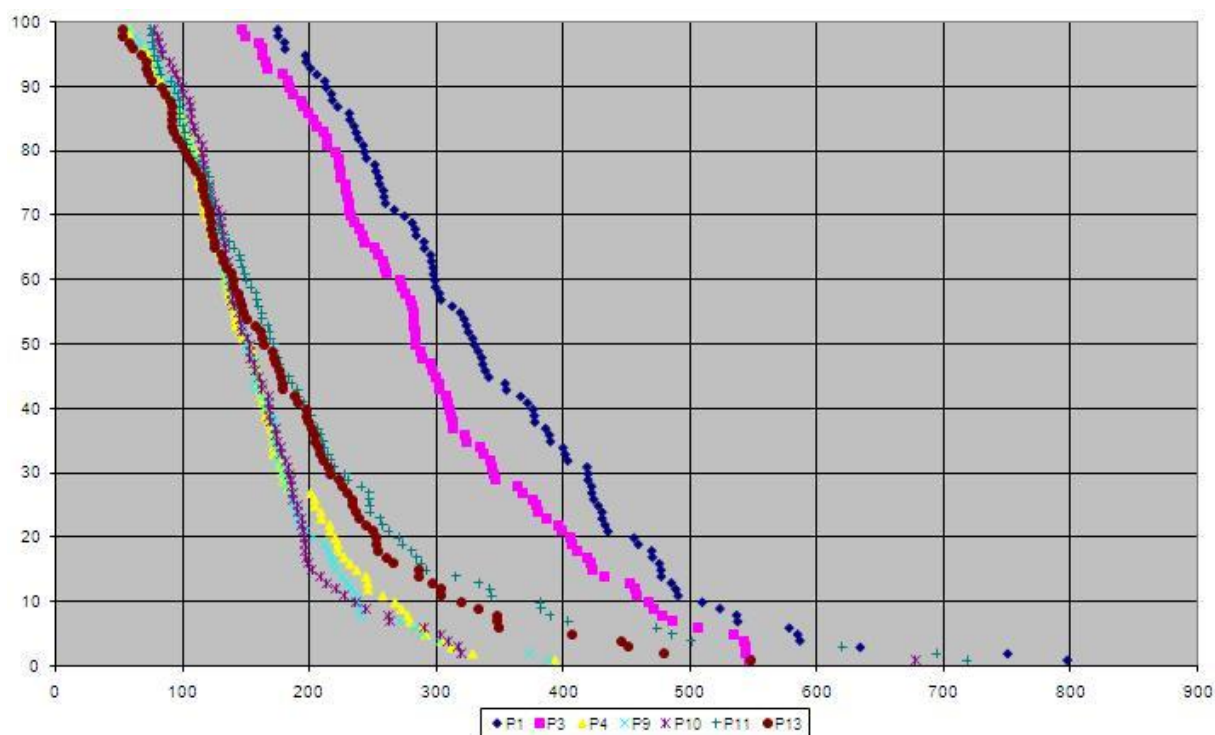


Figure 23: Fréquences inverses cumulées des concentrations du plomb dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour les polygones sélectionnés - Simulations à partir du cokrigeage

Les polygones P4, P9 et P10 présentent des distributions similaires avec une médiane de l'ordre de 150 mg/kg. Les distributions obtenues à partir du cokrigeage sont moins étendues que celles issues du krigeage ordinaire.

6. BIBLIOGRAPHIE

Chilès, J. P., Delfiner P., Geostatistics: modeling spatial uncertainty. Wiley, New-York., 1999

GeoSipol, Contributions pratiques de la géostatistique dans le domaine des sites et sols pollués - Fiches Techniques. Avril 2005.

Géovariance, ISATIS, version 6.0, www.geovaraince.fr (2007)

ANNEXE 3

MODELES UTILISES DANS L'ETUDE

TABLE DES MATIÈRES

1	ADMS (ATMOSPHERIC DISPERSION MODELLING SYSTEM)	2
2	CALTOX 2.3	3
2.1	Module de transfert	4
2.2	Module d'exposition	4
3	CALTOX 4	6
4	HHRAP (Human Health Risk Assessment Protocol for Hazardous Waste Combustion Facilities)	7
4.1	Calcul des concentrations dans les milieux	8
4.2	Voies d'exposition	8
5	MODÈLE INERIS	10
6	IEUBK (Integrated Exposure Uptake Biokinetic model)	12
6.1	Raisons du codage de IEUBK sous Excel	13
6.2	Description du nouveau code de calcul sous IEUBK	14
7	CRYSTAL BALL	18
8	REFERENCES	19

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Schéma de principe de CalTOX	3
Figure 2 : Schéma de principe du modèle HHRAP	7

1 ADMS (ATMOSPHERIC DISPERSION MODELLING SYSTEM)

Développé par la société anglaise CERC, ADMS 3 est commercialisé en France par la société NUMTECH.

Ce logiciel fait l'objet de fiches de qualité internes (fiche de vie : IM186AA.DRC.MECO.ADMS et fiche technique : DI0771). Les informations ci-dessous sont issues de la fiche technique.

ADMS 3, qui bénéficie des dernières mises à jour scientifiques, a fait l'objet de nombreuses campagnes de validation et s'impose comme une référence en matière de calculs de dispersion. Il est employé aussi bien en Europe que dans le reste du monde par des entreprises, des universités, des instituts de recherche ou des organismes gouvernementaux.

Cet outil est particulièrement approprié pour évaluer l'impact atmosphérique sur le long terme de rejets industriels.

Il appartient aux « modèles gaussiens de seconde génération ».

Il est gaussien, parce qu'il suppose que la répartition des concentrations dans le panache de pollution obéit à une loi gaussienne.

Il est dit de « seconde génération », parce qu'il intègre une description de la turbulence atmosphérique plus fine que celle des outils gaussiens classiques, grâce à un pré-processeur météorologique.

La couche limite atmosphérique, couche dans laquelle ont lieu les mélanges de polluants, n'est pas décrite par la seule classe de stabilité comme dans les modèles gaussiens classiques, mais par deux paramètres : sa hauteur et la longueur de Monin-Oboukhov. Une autre spécificité du modèle est de ne pas se référer, dans des conditions météorologiques convectives, à la simple loi gaussienne, mais à une gaussienne modifiée, plus représentative de la distribution réelle des concentrations dans le panache (ainsi que le montrent des études de validation).

2 CALTOX 2.3

CalTOX est un modèle développé sous Excel, par l'Université de Berkeley (University of California, 1993, 1997) et le Lawrence Berkeley National Laboratory pour l'Agence Californienne de Protection de l'Environnement (CALEPA) dans le but d'aider à évaluer les risques pour la santé liés aux sols pollués. Il est toutefois possible d'évaluer les risques liés à d'autres sources de pollution, comme celles dues à une pollution atmosphérique.

Le modèle CalTOX comporte deux parties principales : un module de transfert des polluants dans l'environnement, permettant de calculer les concentrations dans les compartiments environnementaux (sol superficiel, couche de sol cultivable, végétaux, air,...) et un module d'exposition, permettant de calculer les concentrations dans les compartiments d'exposition (fruits et légumes consommés, viande, œufs,...) et les doses d'exposition.

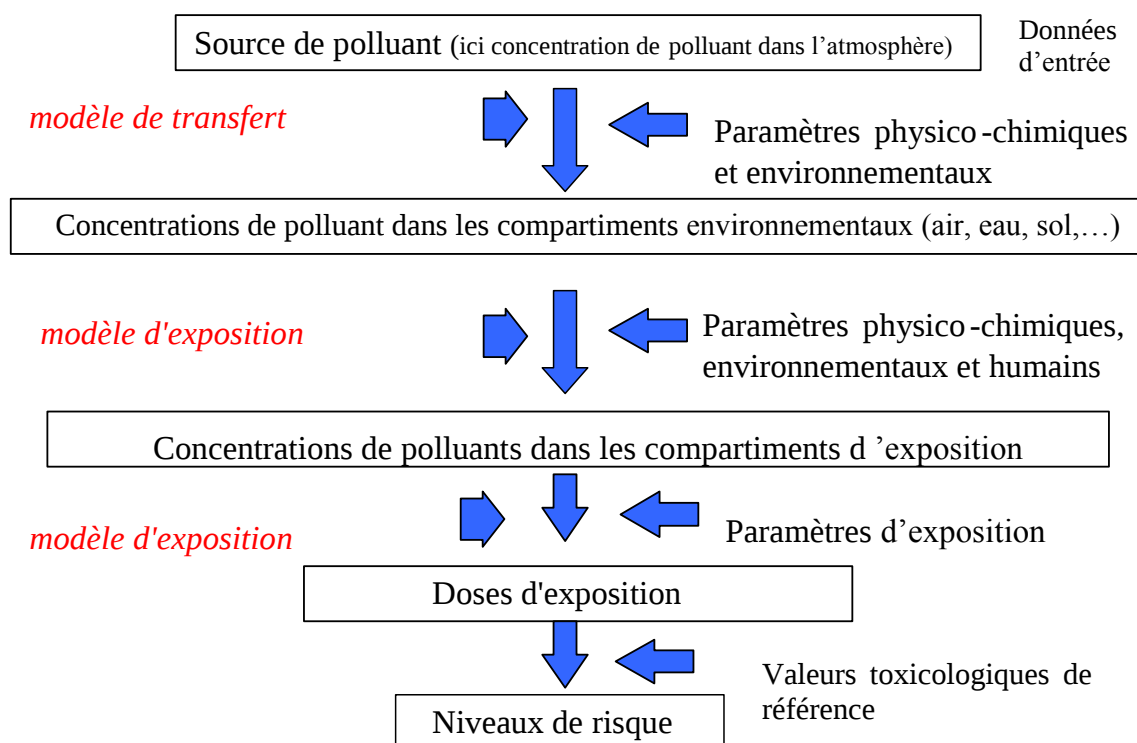


Figure 1 : Schéma de principe de CalTOX

2.1 MODULE DE TRANSFERT

Dans la version 2.3, le modèle de transfert est basé sur une représentation de l'environnement à partir de sept compartiments : une couche de sol superficiel, une couche de sol sous-jacent, dit cultivable ou végétal, une couche de sol plus profond correspondant à la zone située entre la couche cultivable et la nappe, l'air, les eaux superficielles, les sédiments et les végétaux. Un système de sept équations représente les échanges diffusifs et convectifs de polluants entre ces compartiments. Les variations de la masse de polluant dans la couche de sol végétal et la couche de sol la plus profonde au cours du temps sont représentées grâce à deux équations différentielles du premier ordre. Les échanges entre les autres compartiments sont représentés par des équations linéaires, ces compartiments étant considérés dans un état quasi-stationnaire par rapport à la couche de sol cultivable et la couche de sol profond. Ce système d'équations permet d'assurer la prise en compte du principe de conservation de la masse du polluant.

Les concentrations de polluant dans les milieux d'exposition sont ensuite calculées par le module d'exposition à partir des concentrations dans les milieux environnementaux.

2.2 MODULE D'EXPOSITION

Le module d'exposition permet de prendre en compte les voies d'exposition suivantes :

- l'ingestion :
 - d'eaux superficielles et souterraines (consommation alimentaire, baignade),
 - de sol,
 - de végétaux,
 - de viande, de lait, d'œufs,
 - de poissons,
 - de lait maternel,
- l'inhalation de gaz et de particules :
 - à l'extérieur,
 - à l'intérieur et plus spécifiquement dans la salle de bain,
- l'absorption cutanée :
 - à partir du sol,
 - à partir de l'eau (robinet, baignade).

Deux classes de produits végétaux sont considérées :

- les végétaux protégés,
- les végétaux exposés.

Concernant les animaux terrestres intervenant dans la chaîne alimentaire, le modèle distingue :

- les bovins, producteurs de viande et de lait, et consommateurs de végétaux exposés,
- les poules, productrices de viande et d'œufs, et consommatrices de végétaux exposés.

La version 2.3 du modèle et la documentation décrivant les équations sont disponibles sur internet à l'adresse : www.cwo.com/~herd1/ctox_dwn.htm. Par ailleurs, CalTOX 2.3 a fait l'objet d'une analyse détaillée par l'INERIS (INERIS, 2004). Une fiche de vie (IM186AA.DRC.ERSA.CalTOX) et une fiche technique (DI0766) se rapportent également à ce logiciel.

3 CALTOX 4

La version 4 de CalTOX (LBNL, 2002) a fait l'objet de modifications importantes par rapport à la version 2.3. Ainsi, un huitième compartiment a été introduit dans le module de transfert pour représenter de manière plus précise les transferts entre la partie supérieure des végétaux et les milieux air et sol, ainsi que les transferts au sein de la plante.

Cette version intègre aussi des phénomènes de transfert supplémentaires. Il s'agit soit d'échanges négligés dans la précédente version, dans le but de simplifier le système d'équations, soit d'échanges mettant en jeu les végétaux et les nouveaux compartiments créés pour les représenter. Des modifications ont également été apportées à la modélisation de la diffusion des polluants dans les sols (McKone, 2003), à celle de la partition entre fraction gazeuse et particulaire dans l'air pour les substances organiques, aux calculs de la contribution de l'air à la contamination des végétaux exposés, ainsi qu'à l'estimation des contributions du sol et de l'eau d'irrigation à la contamination des végétaux exposés et des végétaux protégés.

La version 4 est disponible sur internet à l'adresse: <http://eetd.lbl.gov/ie/ERA/caltox/index.html>. Elle a également fait l'objet d'une analyse approfondie par l'INERIS détaillant les modifications apportées par rapport à la version 2.3 et mettant en évidence un certain nombre d'erreurs dans le logiciel (INERIS, 2007).

Dans le cadre de ce programme, c'est une version corrigée, après avis des concepteurs, qui a été utilisée.

4 HHRAP (HUMAN HEALTH RISK ASSESSMENT PROTOCOL FOR HAZARDOUS WASTE COMBUSTION FACILITIES)

Il s'agit d'une méthode de calcul développée par l'Office of Solid Waste (structure appartenant à l'US EPA) dans le but d'évaluer les risques liés aux émissions des incinérateurs de déchets dangereux (US EPA, 2005). Les documents présentant cette méthode sont disponibles sur internet à l'adresse : www.epa.gov/epaoswer/hazwaste/combust/riskvol.htm).

Dans HHRAP, les données d'entrée sont les concentrations atmosphériques et les retombées au sol de polluants dans la zone d'étude, ces éléments pouvant être calculés par un logiciel de dispersion atmosphérique.

Les concentrations dans les milieux d'exposition sont ensuite estimées à partir de la concentration dans le ou les milieu(x) amont(s) ou source(s). A titre d'exemple, la concentration de polluant dans les végétaux est calculée à partir de la concentration dans le sol, de la concentration gazeuse de polluant dans l'air et du dépôt particulaire. Une des différences par rapport à CalTOX vient du fait que les équations ne sont pas couplées et qu'il n'y a pas conservation de la masse du polluant. Dans HHRAP, les transferts de polluants sont pris en compte dans un seul sens : du compartiment A (source) vers le compartiment B (récepteur), alors que dans CalTOX, les équations du modèle de transfert représentent les échanges de polluants dans les deux sens : le transfert principal du compartiment A vers le compartiment B, mais aussi le transfert secondaire du compartiment B vers le compartiment A.

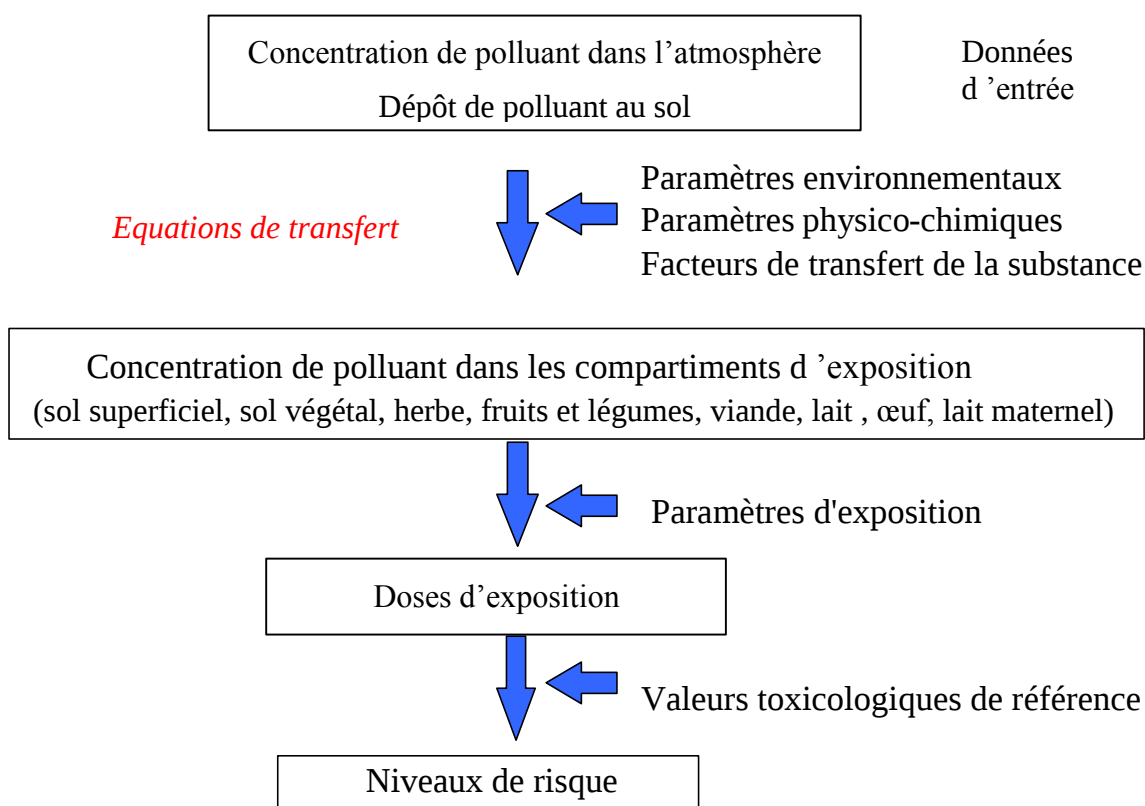


Figure 2 : Schéma de principe du modèle HHRAP

4.1 CALCUL DES CONCENTRATIONS DANS LES MILIEUX

Pour le calcul des dépôts au sol, une distinction est faite entre les dépôts particuliers humide et sec d'une part, et les dépôts gazeux d'autre part.

Pour le calcul des concentrations dans le sol, deux hauteurs de couche sont considérées, l'une de 2 cm qui correspond au sol non bêché et qui est prise en compte pour la contamination par ingestion directe de sol, l'autre de 20 cm qui renvoie au sol bêché et qui est utilisée pour le calcul de la contamination des végétaux par transfert racinaire. La quantité de polluant déposé est considérée comme homogène dans chaque couche de sol. Il convient de noter qu'il ne s'agit pas de deux couches de sol superposées, mais de « zones de dilution » différentes prises en compte selon la voie d'exposition considérée. En outre, le modèle permet de prendre en compte les phénomènes de lixiviation, dégradation, volatilisation, érosion et ruissellement.

Pour le calcul des concentrations dans les végétaux, le modèle tient compte du prélèvement par les racines pour les produits végétaux souterrains, ainsi que des dépôts particuliers sec et humide, et du transfert gazeux à partir de l'air pour les produits exposés poussant au dessus du sol.

Les concentrations dans les aliments d'origine animale et terrestre sont calculées en estimant l'exposition des animaux par ingestion de sol, de fourrage, d'ensilage et/ou de grains et en multipliant cette dose d'exposition par un facteur de transfert vers la matrice considérée.

Le calcul de la concentration dans les eaux de surface met en jeu le dépôt des particules atmosphériques, la diffusion gazeuse à partir de l'air vers les eaux, l'érosion des sols, le ruissellement, la volatilisation, la sédimentation et la dégradation.

La concentration dans les organismes aquatiques est calculée à l'aide d'un facteur de bioconcentration ou de bioaccumulation par rapport à l'eau ou aux sédiments selon les substances.

Enfin, la concentration dans le lait maternel (pour les dioxines) est calculée à partir de l'exposition de la mère et du taux d'élimination de la substance par la mère.

4.2 VOIES D'EXPOSITION

Les voies d'exposition considérées sont :

- l'ingestion de sol,
- l'ingestion d'aliments d'origine végétale,
- l'ingestion d'aliments d'origine animale,
- l'ingestion d'eau,
- l'ingestion de lait maternel.

Six classes de végétaux sont prises en compte :

- les végétaux consommés par les humains avec :

- les légumes et fruits poussant au dessus du sol et protégés (noix, légumes secs,...),
- les légumes et fruits poussant au-dessus du sol mais exposés (salade, haricots, fraises, pommes,...),
- les légumes poussant sous la surface du sol (pommes de terre, carottes,...),
- les végétaux destinés à l'alimentation des animaux avec :
 - le fourrage (herbe et foin),
 - l'ensilage,
 - les céréales.

Concernant les animaux terrestres, le modèle HHRAP distingue :

- les vaches, productrices de lait, et consommatrices de fourrage, d'ensilage et de céréales,
- les bœufs, producteurs de viande, et consommateurs des mêmes aliments que la vache, mais en des quantités différentes,
- les porcs, producteurs de viande, et consommateurs d'ensilage et de céréales,
- la volaille, productrice d'œufs et de viande, et consommatrice de céréales.

L'ensemble des équations est détaillé dans le guide HHRAP, qui propose en outre des valeurs par défaut pour tous les paramètres.

5 MODELE INERIS

Le modèle INERIS est bâti sur le même type d'approches que le modèle HHRAP.

Toutefois, des compléments ont été apportés. Ainsi, une couche de sol supplémentaire a été introduite par rapport à HHRAP pour prendre en compte de manière spécifique la hauteur d'emprise des racines de l'herbe de pâturage, dont la contamination joue souvent un rôle important dans le transfert des polluants persistants vers les produits d'origine animale et donc vers l'homme. Le modèle compte donc trois couches de sol, respectivement de 1, 10 et 20 cm. Là encore, il ne s'agit pas de trois couches superposées mais simplement de trois hypothèses d'homogénéisation de la pollution dans le sol différentes en fonction des voies de transfert considérées.

La contamination des végétaux par remise en suspension de particules à partir du sol a également été introduite, comme dans différents modèles radioécologiques (ERMYN, US DOE ; GENII-S, Pacific Northwest Laboratory ; RESRAD, Argonne National Laboratory) et comme dans CalTOX. Ce phénomène peut en effet être significatif dans la contamination des végétaux par une substance, lorsque cette substance est peu biodisponible par transfert racinaire. Le calcul de la contribution des particules remises en suspension à partir du sol met en oeuvre les équations suivantes :

$$C_{dr} = \frac{D_r \times R_p \times (1 - e^{-k_p \times T_p})}{Y_p \times k_p} \quad \text{Équation 1}$$

avec C_{dr} : contribution de la remise en suspension à partir du sol à la contamination des plantes ($M.M^{-1}$)

R_p : Fraction interceptée (-)

k_p : Constante de lessivage (T^{-1})

T_p : Durée de croissance (T)

Y_p : Rendement cultural ($M.L^{-1}$)

et D_r : Dépôt particulaire secondaire lié à la remise en suspension des particules à partir du sol ($M.L^{-2}.T^{-1}$)

$$D_r = S \times C_s \times V_d \quad \text{Équation 2}$$

avec S : Concentration de particules remises en suspension dans l'air ($M.L^{-3}$),

C_s : concentration de polluant dans le sol ($M.M^{-1}$),

V_d : vitesse de dépôt des particules remises en suspension ($L.T^{-1}$)

La contamination des feuilles des végétaux par irrigation a aussi été prise en compte. L'approche est du même type que celle décrite ci-dessus :

$$C_{ir} = \frac{C_{eau} \times Q_{ir} \times F_w \times R_p \times (1 - e^{-k_p \times T_p})}{Y_p \times k_p} \quad \text{Équation 3}$$

avec C_{ir} : Contribution de l'irrigation à la contamination des feuilles ($M.M^{-1}$),

C_{eau} : concentration de polluant dans l'eau d'irrigation ($M.L^{-3}$),

Q_{ir} : taux d'irrigation pendant la période de croissance ($L^3.T^{-1}$),

F_w : fraction du dépôt humide qui adhère à la surface des plantes (-).

Les autres équations du modèle sont identiques à celles présentées dans le guide HHRAP. Toutefois, les catégories d'animaux considérées sont différentes.

Ainsi, le modèle INERIS prend en compte 7 catégories de végétaux :

- les légumes-feuilles (salades, choux,...),
- les légumes-fruits (haricots, aubergines, tomates,...),
- les légumes-racines (pommes de terre, carottes,..)
- les fruits (fraises, pommes,..),
- le fourrage (herbe et foin),
- le maïs ensilage,
- les céréales.

Le paramétrage du modèle est aussi sensiblement différent par rapport aux valeurs par défaut définies dans HHRAP (l'ensemble des valeurs de paramètres utilisées est détaillée dans l'annexe 5).

6 IEUBK (Integrated Exposure Uptake Biokinetic model)

Ce modèle a été développé par l'US EPA (1994 a, b). Il a pour but d'estimer la concentration de plomb dans le sang d'enfants âgés de 6 mois et 7 ans et exposés via plusieurs milieux d'exposition (l'air, le sol, les poussières et les aliments).

La version logicielle actuellement disponible sur internet porte la référence IEUBKwin version 1.0 build 261. Elle est accessible à l'adresse suivante : <http://www.epa.gov/superfund/lead/products.htm#ieubk>.

Le modèle se décompose en quatre parties :

- le module d'exposition, qui permet de calculer les doses d'exposition externe à partir des concentrations dans les milieux et des paramètres d'exposition des enfants (volume respiratoire, quantité de sol ingéré,...) ;
- le module d'absorption, qui permet de calculer les quantités de polluants absorbées au niveau des poumons et du tractus gastro-intestinal. Ce modèle prend en compte les effets de saturation à haute dose. Le logiciel fournit par tranche d'âge annuelle les quantités de plomb absorbées par milieu d'exposition ;
- le module biocinétique, qui permet de représenter les transferts du plomb entre les différents compartiments corporels (le fluide plasmatique extracellulaire, les hématies, le foie, les reins, les tissus osseux compacts, les tissus osseux spongieux et les autres tissus mous). Le volume et le poids des différents compartiments, les temps de transfert entre les différents compartiments et les temps d'élimination sont calculés mois par mois de la naissance à 84 mois. A partir du niveau de plombémie maternel, le niveau de plombémie et la répartition du plomb entre les différents compartiments est estimée pour le nouveau-né. De mois en mois, les quantités de plomb dans chacun des compartiments et dans le sang sont ensuite calculées par la résolution d'un système d'équations différentielles de manière numérique (algorithme d'Euler avec un pas de temps défini par l'utilisateur).

Les résultats fournis par le logiciel sont les concentrations de plomb dans le sang par tranche d'âge annuelle ;

- le module de distribution probabiliste, qui permet, pour un enfant ou une population d'enfants présentant les conditions d'exposition défini dans le module d'exposition de calculer la probabilité de dépasser une valeur donnée de plombémie. Le modèle s'appuie pour cela sur l'hypothèse d'une distribution lognormale de la plombémie. La moyenne géométrique est égale à la valeur issue du module biocinétique. Un écart-type géométrique a été défini de manière générique, à partir de mesures sur site. Il a pour but de représenter la variabilité inter-individuelle de la plombémie pour des enfants de même âge, ayant la même exposition.

La première version de IEUBK date de 1994. Une documentation complète est disponible : guide de l'utilisateur, document technique présentant l'ensemble des paramètres et des équations, questions fréquemment posées, recommandations

sur la manière de définir certains paramètres, exemples d'utilisation (US EPA : 1994 a,b, 1999, 2000, 2002)

Le modèle a fait aussi l'objet de travaux de validation : comparaison avec d'autres modèles, documentation de sa base scientifique, vérification du code, comparaison avec des données empiriques (US EPA, 1994 c, Zaragoza, 1998).

6.1 RAISONS DU CODAGE DE IEUBK SOUS EXCEL

Pour mener à bien cette étude, il a été nécessaire de recoder IEUBK.

En effet, dans IEUBK, l'approche probabiliste proposée ne permet pas de prendre en compte les incertitudes sur les paramètres d'entrée du modèle. La distribution gaussienne définie à partir de la variable de sortie du module biocinétique n'ayant pour but de représenter que la variabilité interindividuelle pour des individus exposés aux mêmes conditions. L'impact des incertitudes attachées à l'estimation des concentrations dans les milieux d'exposition et résultant des deux premiers maillons de la chaîne de modélisation ne pouvait donc pas être pris en compte avec le logiciel IEUBK disponible.

Un autre logiciel nommé ISE v.1.4.1 (Integrated Stochastic Exposure model for lead) a été développé par Syracuse Research Corporation¹) pour tenir compte à la fois de l'incertitude et de la variabilité dans la modélisation de la plombémie. Pourtant, ce modèle offre pour l'instant peu de flexibilité quant aux distributions pouvant être utilisées pour les paramètres d'entrée. Certains paramètres, comme les taux d'absorption par inhalation ou la plombémie maternelle, ne peuvent être définis que de manière déterministe. Pour d'autres, comme les quantités de sol ingéré ou les quantités de plomb ingéré par l'alimentation, les seules distributions pouvant être utilisées sont des lois lognormales. Un couplage direct des modèles multimédia avec ISE n'est donc pas possible. Il serait en effet nécessaire, pour chaque cas d'étude, d'ajuster, par exemple, les distributions empiriques obtenues en sortie du modèle multimédia pour les doses d'exposition liées à la consommation d'aliments autoproduits, à des distributions lognormales. Ces distributions lognormales pourraient être ensuite utilisées comme données d'entrée de ISE. Mais, ce travail à renouveler pour chaque milieux d'exposition et chaque cas serait très fastidieux et engendrerait des pertes d'information plus ou moins grande selon la qualité des ajustements réalisés entre distributions empiriques et distributions lognormales.

Par ailleurs, dans les logiciels IEUBK et ISE, les paramètres d'entrée ne peuvent être définis que sur une base annuelle. Il n'est donc pas possible de tenir compte des variations de concentration dans les milieux correspondant à une échelle de temps plus petite. Or, l'analyse des émissions de l'usine montre par exemple une augmentation importante des émissions sur mai et juin 2001. L'influence de telles variations sur la plombémie en termes d'amplitude et de durée ne peut être connue avec IEUBKwin v1.0. Recoder le modèle permet d'avoir accès à la plombémie mois après mois et donc de visualiser l'impact d'un pic d'émission en fonction du temps.

¹ Logiciel accessible à l'adresse : http://www.syrres.com/eSc/ise_model.htm

6.2 DESCRIPTION DU NOUVEAU CODE DE CALCUL SOUS IEUBK

Ce codage a été réalisé sous Excel pour pouvoir facilement coupler les modèles multimédia au modèle biocinétique et calculer lors de chacune des simulations gérées par Crystal Ball, les concentrations dans les milieux et les plombémies correspondantes de 0 à 84 mois.

Le codage a été réalisé à partir de la description des équations et des paramètres fournis dans le Technical Support Document (US EPA 1994 b) et d'un rapport intitulé « Bridge Document » fourni par les concepteurs (US EPA, 1994 d). Les doses d'exposition, les quantités absorbées, les poids, les volumes des différents compartiments, les temps de transfert et les temps d'élimination sont calculés sur des feuilles de calculs dédiées, mois par mois, de 0 à 84 mois. La quantité de plomb dans chaque compartiment, le temps de transfert du plomb du fluide plasmatique extracellulaire aux hématies et la concentration de plomb dans le sang sont calculés à l'aide d'une macro. Cette macro reproduit l'algorithme d'Euler avec un pas de temps en entrée, comme dans le modèle original.

Les résultats fournis par le modèle ont été vérifiés par comparaison avec les résultats fournis par IEUBKwin version1.0 sur plusieurs cas. Les résultats obtenus sont parfaitement identiques pour l'ensemble des classes d'âge, comme en témoigne l'exemple ci-dessous.

Feuille de résultats issus du modèle IEUBK original

LEAD MODEL FOR WINDOWS Version 1.0

Model Version: 1.0 Build 255

User Name:

Date:

Site Name:

Operable Unit:

Run Mode: Research

The time step used in this model run: 1 - Every 4 Hours (6 times a day).

***** Air *****

Indoor Air Pb Concentration: 100.000 percent of outdoor.

Other Air Parameters:

Age	Time Outdoors (hours)	Ventilation Rate (m ³ /day)	Lung Absorption (%)	Outdoor Air Pb Conc (ug Pb/m ³)
.5-1	1.000	2.000	32.000	0.100
1-2	2.000	3.000	32.000	0.100
2-3	3.000	5.000	32.000	0.100
3-4	4.000	5.000	32.000	0.100
4-5	4.000	5.000	32.000	0.100
5-6	4.000	7.000	32.000	0.100
6-7	4.000	7.000	32.000	0.100

***** Diet *****

Age	Diet Intake(ug/day)
.5-1	20.000
1-2	20.000
2-3	20.000
3-4	20.000
4-5	20.000
5-6	20.000
6-7	20.000

***** Drinking Water *****

Water Consumption:

Age	Water (L/day)
.5-1	0.200
1-2	0.500
2-3	0.520
3-4	0.530
4-5	0.550
5-6	0.580
6-7	0.590

Drinking Water Concentration: 4.000 ug Pb/L

***** Soil & Dust *****

Multiple Source Analysis Used

Average multiple source concentration: 290.000 ug/g

Mass fraction of outdoor soil to indoor dust conversion factor: 0.700

Outdoor airborne lead to indoor household dust lead concentration: 100.000

Use alternate indoor dust Pb sources? No

Age	Soil (ug Pb/g)	House Dust (ug Pb/g)
.5-1	400.000	290.000
1-2	400.000	290.000
2-3	400.000	290.000
3-4	400.000	290.000

Feuille de résultats issus du modèle IEUBK original (suite)

4-5	400.000	290.000
5-6	400.000	290.000
6-7	400.000	290.000

***** Alternate Intake *****

Age	Alternate (ug Pb/day)
.5-1	0.000
1-2	0.000
2-3	0.000
3-4	0.000
4-5	0.000
5-6	0.000
6-7	0.000

***** Maternal Contribution: Infant Model *****

Maternal Blood Concentration: 2.500 ug Pb/dL

CALCULATED BLOOD LEAD AND LEAD UPTAKES:

Year	Air (ug/dL)	Diet (ug/day)	Alternate (ug/day)	Water (ug/day)
.5-1	0.064	8.314	0.000	0.333
1-2	0.096	8.314	0.000	0.831
2-3	0.160	8.518	0.000	0.886
3-4	0.160	8.697	0.000	0.922
4-5	0.160	8.992	0.000	0.989
5-6	0.224	9.129	0.000	1.059
6-7	0.224	9.211	0.000	1.087

Year	Soil+Dust (ug/day)	Total (ug/day)	Blood (ug/dL)
.5-1	7.198	15.909	8.4
1-2	11.432	20.673	8.6
2-3	11.712	21.275	7.9
3-4	11.959	21.738	7.5
4-5	9.159	19.300	6.6
5-6	8.368	18.780	5.9
6-7	7.974	18.496	5.3

Tableau de résultats présentant les concentrations de plomb dans les différents compartiments en fonction de l'âge, pour le même cas test, à partir de la version de IEUBK recodé sous Excel

Age (an)	Mois	sommeblood	Mliver(mois)	Mkid(mois)	Mtrab(mois)	Mcori(mois)	Mother(mois)	MPLECF(moi	Mplasm(mois)	MRBC(mois)	TPLRBC2(mc Pb	blood(mois)
0	0		3,46	0,56	8,81	54,29	82,56	0,10	0,08	7,76	0,10	2,11
	1	821,55	13,11	1,97	43,91	175,69	125,59	0,33	0,14	27,59	0,10	4,56
	2	1357,16	18,30	2,79	61,71	246,85	186,95	0,41	0,18	37,88	0,10	7,54
	3	1537,79	22,48	3,50	75,40	301,59	244,06	0,47	0,21	43,64	0,10	8,54
	4	1589,75	26,46	4,18	87,56	350,22	294,75	0,50	0,23	47,72	0,10	8,83
	5	1596,20	30,56	4,85	98,92	395,67	339,97	0,54	0,24	51,10	0,10	8,87
	6	1584,91	34,94	5,52	109,60	438,42	380,57	0,57	0,26	54,11	0,10	8,81
	7	1566,02	39,65	6,17	119,54	478,16	416,92	0,59	0,27	56,89	0,10	8,70
	8	1543,55	44,67	6,80	128,61	514,45	449,08	0,62	0,29	59,47	0,10	8,58
	9	1519,22	49,94	7,40	136,75	547,00	476,95	0,64	0,30	61,84	0,10	8,44
	10	1493,81	55,31	7,96	143,94	575,75	500,48	0,66	0,31	64,02	0,10	8,30
	11	1467,75	60,66	8,47	150,22	600,86	519,70	0,68	0,32	65,97	0,10	8,15
1	12	1441,35	65,82	8,92	155,67	622,70	534,80	0,70	0,33	67,71	0,10	8,01
	13	1515,12	79,14	10,61	171,57	686,29	568,26	0,81	0,38	77,26	0,10	8,42
	14	1590,82	87,97	11,44	183,05	732,18	601,76	0,86	0,40	82,34	0,10	8,84
	15	1614,10	95,02	12,07	191,51	766,04	630,45	0,89	0,42	85,76	0,10	8,97
	16	1615,02	100,75	12,56	198,19	792,76	652,94	0,91	0,43	88,17	0,10	8,97
	17	1604,18	105,48	12,95	203,85	815,40	669,52	0,93	0,44	89,92	0,10	8,91
	18	1587,38	109,42	13,28	208,96	835,84	681,16	0,94	0,44	91,23	0,10	8,82
	19	1568,01	112,78	13,57	213,82	855,28	689,05	0,95	0,45	92,25	0,10	8,71
	20	1548,00	115,68	13,82	218,61	874,46	694,31	0,96	0,45	93,06	0,10	8,60
	21	1528,44	118,25	14,06	223,46	893,85	697,89	0,97	0,45	93,74	0,10	8,49
	22	1511,09	120,74	14,30	228,74	914,97	700,85	0,97	0,46	94,45	0,10	8,39
	23	1495,51	123,00	14,53	234,10	936,39	703,57	0,98	0,46	95,06	0,10	8,31
2	24	1480,77	125,11	14,74	239,59	958,35	706,34	0,98	0,46	95,60	0,10	8,23
	25	1468,62	127,32	14,99	245,67	982,69	709,81	0,99	0,46	96,27	0,10	8,16
	26	1456,82	129,21	15,18	251,43	1005,72	713,51	0,99	0,46	96,68	0,10	8,09
	27	1444,93	131,06	15,38	257,42	1029,67	717,66	1,00	0,47	97,12	0,10	8,03
	28	1434,39	132,89	15,59	263,63	1054,51	722,38	1,00	0,47	97,56	0,10	7,97
	29	1424,97	134,71	15,80	270,05	1080,20	727,73	1,01	0,47	98,00	0,10	7,92
	30	1416,52	136,52	16,00	276,68	1106,70	733,75	1,01	0,47	98,46	0,10	7,87
	31	1408,93	138,33	16,21	283,49	1133,97	740,42	1,02	0,47	98,92	0,10	7,83
	32	1402,08	140,13	16,42	290,49	1161,96	747,72	1,02	0,48	99,40	0,10	7,79
	33	1395,87	141,93	16,63	297,66	1190,63	755,62	1,03	0,48	99,88	0,10	7,75
	34	1390,19	143,72	16,84	304,98	1219,93	764,07	1,03	0,48	100,38	0,10	7,72
	35	1384,97	145,50	17,06	312,45	1249,82	773,03	1,04	0,48	100,89	0,10	7,69
3	36	1380,13	147,27	17,27	320,06	1280,26	782,46	1,04	0,48	101,41	0,10	7,67
	37	1375,76	149,06	17,48	327,86	1311,44	792,36	1,05	0,49	101,95	0,10	7,64
	38	1371,68	150,82	17,69	335,76	1343,03	802,65	1,05	0,49	102,51	0,10	7,62
	39	1367,73	152,55	17,90	343,75	1375,01	813,27	1,06	0,49	103,06	0,10	7,60
	40	1363,88	154,26	18,10	351,83	1407,34	824,18	1,06	0,49	103,62	0,10	7,58
	41	1360,10	155,93	18,31	360,00	1440,00	835,34	1,07	0,50	104,19	0,10	7,56
	42	1356,37	157,58	18,51	368,24	1472,95	846,69	1,08	0,50	104,77	0,10	7,54
	43	1352,65	159,20	18,70	376,54	1506,16	858,21	1,08	0,50	105,35	0,10	7,51
	44	1348,92	160,78	18,90	384,90	1539,61	869,85	1,09	0,51	105,93	0,10	7,49
	45	1345,15	162,32	19,09	393,31	1573,24	881,58	1,09	0,51	106,52	0,10	7,47
	46	1341,33	163,83	19,27	401,76	1607,05	893,36	1,10	0,51	107,12	0,10	7,45
	47	1337,44	165,30	19,45	410,25	1640,98	905,16	1,11	0,51	107,71	0,10	7,43
4	48	1333,45	166,72	19,63	418,76	1675,02	916,94	1,11	0,52	108,31	0,10	7,41
	49	1302,15	163,14	18,98	416,03	1664,14	920,23	1,07	0,50	105,11	0,10	7,23
	50	1265,22	160,91	18,79	415,27	1661,09	920,56	1,06	0,49	103,59	0,10	7,03
	51	1239,19	159,45	18,67	416,21	1664,86	919,77	1,05	0,49	102,57	0,10	6,88
	52	1218,17	158,51	18,60	418,47	1673,89	918,88	1,04	0,48	101,88	0,10	6,77
	53	1200,76	157,95	18,57	421,75	1687,00	918,45	1,04	0,48	101,45	0,10	6,67
	54	1186,06	157,67	18,56	425,81	1703,25	918,72	1,03	0,48	101,21	0,10	6,59
	55	1173,40	157,59	18,58	430,49	1721,96	919,79	1,03	0,48	101,12	0,10	6,52
	56	1162,31	157,68	18,62	435,64	1742,56	921,64	1,03	0,48	101,15	0,10	6,46
	57	1152,39	157,87	18,66	441,16	1764,63	924,19	1,03	0,48	101,27	0,10	6,40
	58	1143,37	158,14	18,71	446,96	1787,83	927,34	1,04	0,48	101,47	0,10	6,35
	59	1135,03	158,47	18,77	452,98	1811,90	930,97	1,04	0,48	101,71	0,10	6,31
5	60	1127,20	158,82	18,83	459,16	1836,62	934,98	1,04	0,48	102,00	0,10	6,26
	61	1113,39	157,95	18,68	462,45	1849,79	937,16	1,03	0,48	101,35	0,10	6,19
	62	1099,02	157,45	18,66	466,24	1864,98	938,83	1,03	0,48	101,19	0,10	6,11
	63	1087,31	157,15	18,65	470,51	1882,03	940,31	1,03	0,48	101,15	0,10	6,04
	64	1076,76	156,96	18,66	475,14	1900,55	941,76	1,03	0,48	101,20	0,10	5,98
	65	1067,04	156,85	18,67	480,05	1920,21	943,25	1,03	0,48	101,32	0,10	5,93
	66	1057,97	156,80	18,68	485,19	1940,74	944,79	1,04	0,48	101,49	0,10	5,88
	67	1049,40	156,79	18,70	490,49	1961,95	946,40	1,04	0,48	101,70	0,10	5,83
	68	1041,23	156,80	18,72	495,91	1983,66	948,03	1,04	0,48	101,94	0,10	5,78
	69	1033,37	156,83	18,75	501,43	2005,72	949,65	1,04	0,48	102,21	0,10	5,74
	70	1025,76	156,86	18,77	507,01	2028,04	951,22	1,05	0,48	102,49	0,10	5,70
	71	1018,32	156,88	18,79	512,63	2050,51	952,71	1,05	0,48	102,79	0,10	5,66
6	72	1011,04	156,90	18,81	518,27	2073,07	954,07	1,05	0,48	103,10	0,10	5,62
	73	1000,65	156,22	18,72	522,18	2088,71	954,11	1,05	0,48	102,87	0,10	5,56
	74	990,09	155,75	18,69	526,29	2105,15	953,64	1,05	0,48	102,91	0,10	5,50
	75	980,83	155,37	18,66	530,60	2122,39	952,81	1,05	0,48	103,01	0,10	5,45
	76	972,06	155,03	18,65	535,06	2140,25	951,72	1,05	0,48	103,15	0,10	5,40
	77	963,66	154,71	18,63	539,65	2158,61	950,42	1,05	0,48	103,31	0,10	5,35
	78	955,57	154,42	18,61	544,33	2177,33	948,94	1,05	0,48	103,49	0,10	5,31
	79	947,73	154,13	18,60	549,08	2196,33	947,31	1,06	0,48	103,69	0,10	5,27
	80	940,10	153,86	18,58	553,88	2215,52	945,52	1,06	0,48	103,89	0,10	5,22
	81	932,65	153,58	18,57	558,71	2234,84	943,58	1,06	0,48	104,11	0,10	5,18
	82	925,36	153,30	18,55	563,56	2254,25	941,48	1,06	0,48	104,33	0,10	5,14
	7	83	918,20	153,01	18,54	568,42	2273,70	939,21	1,06	0,48	104,55	0,10
84		911,16	152,72	18,52	573,29	2293,15	936,78	1,07	0,48	104,77	0,10	5,06

plombémie (µg/dl) moyenne de 0.5 à 1 an

8,43

plombémie (µg/dl) moyenne de 1 à 2 an

8,64

plombémie (µg/dl) moyenne de 2 à 3 ans

7,87

plombémie (µg/dl) moyenne de 3 à 4 ans

7,53

plombémie (µg/dl) moyenne de 4 à 5 ans

6,62

plombémie (µg/dl) moyenne de 5 à 6 ans

5,87

plombémie (µg/dl) moyenne de 6 à 7 ans

5,30

plombémie (µg/dl) moyenne
de 0.5 à 1 an
8,43

plombémie (µg/dl) moyenne
de 1 à 2 an
8,64

plombémie (µg/dl) moyenne
de 2 à 3 ans
7,87

plombémie (µg/dl) moyenne
de 3 à 4 ans
7,53

plombémie (µg/dl) moyenne
de 4 à 5 ans
6,62

plombémie (µg/dl) moyenne
de 5 à 6 ans
5,87

plombémie (µg/dl) moyenne
de 6 à 7 ans
5,30

7 CRYSTAL BALL

Crystal Ball est un logiciel s'utilisant à partir d'Excel et permettant de mener des calculs probabilistes. Crystal Ball est distribué par la société Decisoneering. Dans la conduite de ce programme deux versions ont été utilisées, celle de 2000 et la version 7.2 (2005).

A partir d'un modèle construit sous Excel, le principe est d'affecter des distributions aux paramètres d'entrée du modèle. Des simulations de calculs successives sont alors réalisées, lors desquelles Crystal Ball tire au sort, pour chaque variable d'entrée, une valeur en fonction de la distribution définie pour cette variable. Cette procédure de calcul permet d'obtenir une distribution de valeurs pour chaque variable de sortie sélectionnée par l'utilisateur.

Les distributions affectées aux variables d'entrée peuvent être des lois de probabilités discrètes ou continues. Elles peuvent également être construites directement à partir de données empiriques sans ajustement à une loi connue. Par ailleurs, des corrélations peuvent être définies entre les variables d'entrée.

Les tirages au sort peuvent être réalisés selon une approche de type Monte-Carlo ou Hypercube Latin.

Crystal Ball fournit les caractéristiques statistiques des distributions obtenues pour les variables de sortie, ainsi que les valeurs calculées lors de chaque simulation.

Enfin, Crystal Ball permet de mener des analyses de sensibilité. L'approche utilisée par le logiciel consiste à calculer les coefficients de corrélation entre la ou les variable(s) de sortie et chaque variable d'entrée. Toutefois, au lieu de calculer ces coefficients à partir des valeurs brutes des variables, le logiciel classe les valeurs obtenues et conduit les calculs à partir de leurs rangs.

8 REFERENCES

Argonne National Laboratory, User's manual for RESRAD Version 6, ANL/EAD-4, 2001

CERC (Cambridge Environmental Research Consultants), ADMS 3. User Guide. Sept 2001

Decisoneering, Crystal Ball 2000, Standard edition

Decisoneering, Crystal Ball 7.2, Professional Edition, 2005

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Malherbe L., Fiche technique du logiciel scientifique ADMS, DI0771

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Le logiciel de calcul CalTOX, 2004, DRC-04-45959-ERSA-RBn-n° 097

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Le logiciel de calcul CalTOX 4.0, 2007, N° DRC-07-86835-16788A

LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory), CalTOX, A multimedia total exposure model spreadsheet user's guide, McKone, Enoch, 2002

McKone T., Bennett D., Chemical-specific representation of air-soil exchange and soil penetration in regional multimedia models, Environmental Science and Technology, vol. 37, 2003

Pacific Northwest Laboratory, Conceptual representation, Volume 1 of GENII, 1988

Syracuse Research Corporation, Integrated Stochastic Exposure (ISE) Model, ISE v1.4.1, 2003, http://www.syrres.com/eSc/ise_model.htm

University of California. CALTOX, a multimedia total exposure model for hazardous-waste sites : The Department of Toxic Substances control (DTSC), 1993

University of California. CALTOX version 2.3, Description of modifications and revisions. Berkeley : The Department of Toxic Substances control (DTSC), 1997

University of California. Final draft report : Intermedia transfer for contaminants found at hazardous wastes sites : The Department of Toxic Substances Control (DTSC), 1995

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Wesley W., Biosphere model report, MDL-MGR-MD-000001 Rev00, 2003

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Guidance manual for the IEUBK model for lead in children, report PB93-963510, 1994 a

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Technical support document: Parameters and equations used in the integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children (v0.99d), report PB94-963505, 1994 b

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Validation strategy for the Integrated Exposure Uptake Biokinetic model for lead in children, 1994 c

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Pollution Prevention and Toxics, Draft final report for task 2-8-1, Correspondance between the IEUBK lead model source code and technical support document : parameters and equations used in the integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children (v0.99d), Bridge Document ,1994 d

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: IEUBK model soil/dust ingestion rates, EPA #540-F-00-007, 1999 a

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: IEUBK model bioavailability variable, EPA #540-F-00-006, 1999 c

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: TRW recommendations for sampling and analysis of soil at lead sites, EPA #540-F-00-010, 2000

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: Overview of the IEUBK model for lead in children, report PB99-9635-8, 2002

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste, Human Health Risk Assessment Protocol for hazardous waste combustion facilities (HHRAP), report EPA/530/R-05-006, 2005

US EPA (US Environmental Protection Agency), Metal workgroups, IEUBK frequently asked questions (FAQs), [www.epa.gov/superfund, programs/lead/ieubkfaq.htm](http://www.epa.gov/superfund/programs/lead/ieubkfaq.htm)

Zaragora L., Hogan K., The Integrated Exposure Uptake Biokinetic Model for lead in children: Independant validation and verification, Environmental Health Perspective 106 (Suppl6), 1998

ANNEXE 4

MODELISATION DES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET DES DEPOTS DE PLOMB AU SOL

TABLE DES MATIERES

1	INTRODUCTION	3
2	MODELISATION DES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET DES DEPOTS DE PLOMB A PARTIR DES FLUX CANALISES	4
2.1	Hypothèses de calcul.....	4
2.2	Comparaison des résultats de modélisation avec les mesures	5
2.3	Effet du paramétrage	7
3	PRISE EN COMPTE D'UNE SOURCE DIFFUSE	9
4	DEFINITION D'UN MODELE STATISTIQUE DES DEPOTS DE PLOMB AU SOL	11

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Caractéristiques des cheminées de l'usine.....	4
--	---

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Comparaison des concentrations mensuelles issues de la mesure et issues de la mesure et de la modélisation.....	5
Figure 2 : Comparaison des concentrations attribuables aux émissions canalisées de l'usine issues de la mesure et des concentrations modélisées les jours de prélèvement à l'émission	6
Figure 3 : Comparaison des dépôts attribuables à l'usine estimés à partir de la mesure avec ceux estimés par modélisation (a) en octobre 2005, et (b) en novembre 2005.....	7
Figure 4 : Rapport entre les dépôts mesurés en novembre 2005 et les dépôts modélisés selon différentes hypothèses de calcul.....	8
Figure 5 : Test de la normalité des résidus.....	12
Figure 6 : Test de l'homoscédasticité des résidus	12

1 INTRODUCTION

L'estimation des concentrations atmosphériques et des dépôts de plomb au sol à partir des émissions correspond au premier maillon de la chaîne de modélisation permettant d'estimer les niveaux d'exposition et la plombémie en particulier. Les données de sortie du modèle de dispersion atmosphérique devant servir de données d'entrée aux modèles multimédias, il est important d'effectuer un premier niveau de vérification de la qualité de la modélisation en comparant les résultats de la modélisation de la dispersion atmosphérique avec les concentrations atmosphériques et les dépôts de plomb mesurés au sol.

Un résumé des principaux résultats obtenus est présenté dans le corps du rapport. Cette annexe décrit la démarche de modélisation adoptée pour estimer les concentrations atmosphériques et les dépôts de plomb au sol, ainsi que l'ensemble des résultats obtenus.

2 MODELISATION DES CONCENTRATIONS ATMOSPHERIQUES ET DES DEPOTS DE PLOMB A PARTIR DES FLUX CANALISES

Compte-tenu des pratiques de modélisation de l'INERIS, le choix a été arrêté de modéliser la dispersion atmosphérique du plomb à l'aide du logiciel ADMS (voir description en annexe 3).

2.1 HYPOTHESES DE CALCUL

La modélisation a été réalisée à partir des flux d'émission de plomb, contrôlés chaque mois en sortie de cheminée.

L'usine Métal-Blanc comporte quatre cheminées. Les essais de modélisation ont été menés en utilisant les positions et les caractéristiques de chacune de ces cheminées.

Tableau 1 : Caractéristiques des cheminées de l'usine (coordonnées en Lambert II)

Cheminée	X	Y	Hauteur (m)	Diamètre (m)
Four 1 (R1)	758050	2545850	18,4	0,9
Four 2 (R2)	758086	2545807	17,8	1,10
Affinage (R3)	758072	2545844	17,8	1,10
Assainissement (R4)	758045	2545834	18,4	1,26

Les comparaisons ont été effectuées en utilisant la température et la vitesse d'éjection mesurées chaque mois (données issues des rapports de surveillance mensuelle), sur chaque conduit de cheminée.

Les données météorologiques horaires correspondant à la période d'étude ont été acquises auprès de Météo-France et utilisées. Concernant la température, la pluviométrie, la force et la direction du vent, ces données sont issues de la station météorologique de Rocroi, située à 5 kilomètres de Bourg-Fidèle, sur le même plateau topographique.

Pour la nébulosité, les données diurnes sont celles de la station de Charleville-Mézières, qui se situe à 30 kilomètres environ de Bourg-Fidèle. Ces données sont jugées « assez représentatives » de la nébulosité au niveau du plateau de Rocroi par Météo-France. Les données de nébulosité nocturnes sont elles issues de la station de Reims qui, de fait, est relativement éloignée. La représentativité de ces données a donc été vérifiée en comparant les données diurnes de Reims à celle de Charleville-Mézières. L'arrêt de la mesure de la nébulosité sur la station de Reims à partir de Mai 2005 a conduit à estimer la nébulosité de 16 heures à 5 heures du matin par interpolation au-delà de cette date.

Une valeur de 0,2 (correspondant à des cultures de blé par exemple) a été utilisée pour définir la rugosité de la zone d'étude.

La granulométrie des particules émises a été définie à partir de l'analyse granulométrique menée sur un échantillon prélevé à l'amont des filtres de cheminée. Les diamètres de particules mesurés étant compris entre 0,08 μm et 137 μm et les filtres étant donnés pour un diamètre de coupe de 3 μm , dix classes

granulométriques allant 0,08 à 3 µm ont été définies en fonction de la distribution statistique des tailles de particules.

Une densité de 7400 kg/m³ a été prise en compte, calculée sur la base du pourcentage moyen de plomb (65%) des particules.

L'effet des bâtiments, dont la hauteur est de huit mètres, n'a pas été intégré dans la modélisation (leur effet a été testé par ailleurs, cf. section 2.3).

Compte-tenu de la zone d'intérêt de l'étude et de la position de l'usine dans le village, le domaine de modélisation est décentré par rapport à l'usine. Le domaine couvert représente environ 2 km² avec des mailles de 45 mètres de côté.

2.2 COMPARAISON DES RESULTATS DE MODELISATION AVEC LES MESURES

De janvier 2002 à novembre 2005, pour les mois où l'INERIS disposait des conditions météorologiques, les moyennes mensuelles des concentrations attendues au niveau du préleveur de polluants atmosphériques (Partisol) ont été estimées par ADMS, en prenant en compte les flux mensuels des émissions canalisées.

La Figure 1 présente les concentrations modélisées au niveau du Partisol et les moyennes mensuelles des concentrations attribuables aux émissions canalisées de l'usine, d'après les mesures obtenues grâce à l'appareil. Ces concentrations ont été calculées en retranchant des concentrations moyennes mesurées les jours de semaine, les concentrations moyennes mesurées durant le week-end (rappel : l'usine ne fonctionnant pas le week-end depuis 2002).

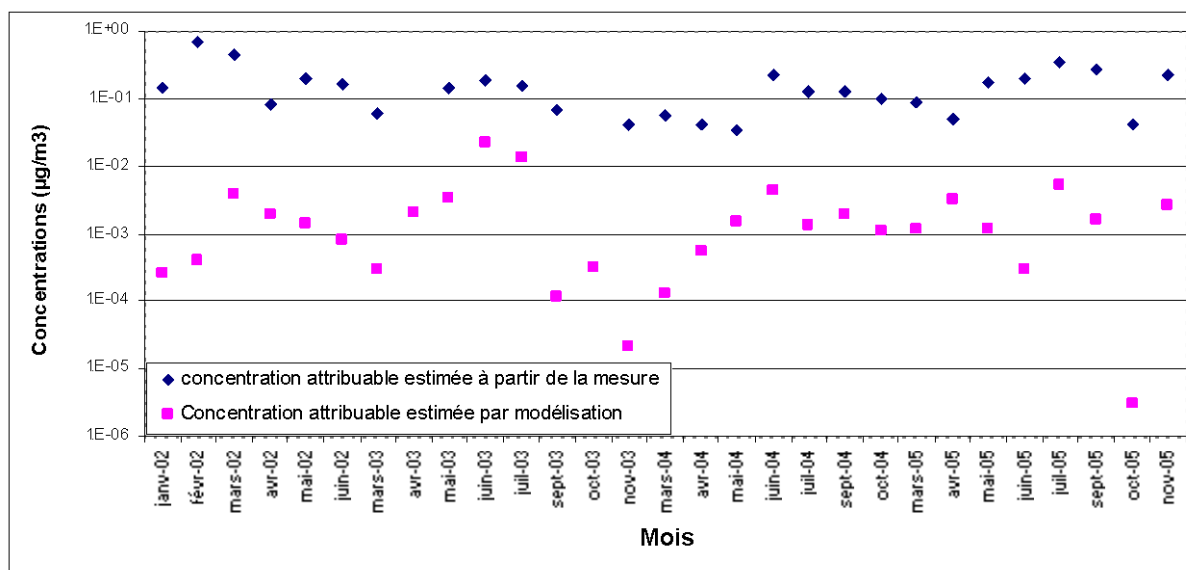


Figure 1 : Comparaison des concentrations mensuelles issues de la mesure et issues de la mesure et de la modélisation

La moyenne géométrique des rapports « concentration issue de la mesure » sur « concentration modélisée » est supérieure à 100. Pour vérifier que le problème de sous-estimation des concentrations moyennes mesurées n'est pas lié à une sous-estimation des flux canalisés mesurés ponctuellement, pendant quelques heures chaque mois, les concentrations atmosphériques de plomb mesurées le jour du prélèvement ont été comparées, pour quelques cas (lorsque celles-ci étaient supérieures au niveau mesuré le week-end), à celles modélisées, en fonction des

données météorologiques du jour du prélèvement. Les résultats obtenus sont du même ordre (cf. Figure 2).

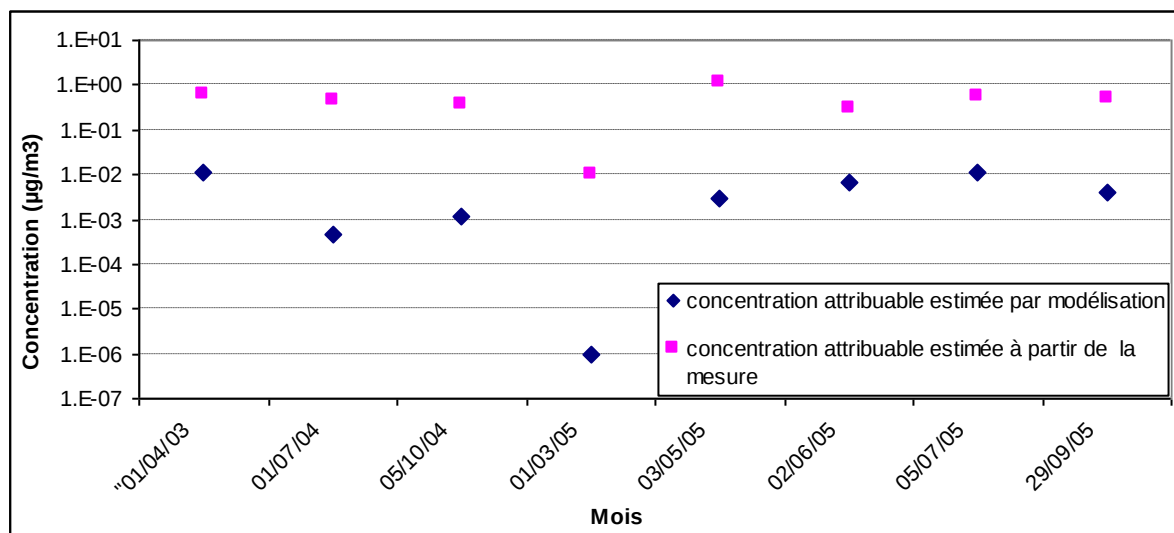
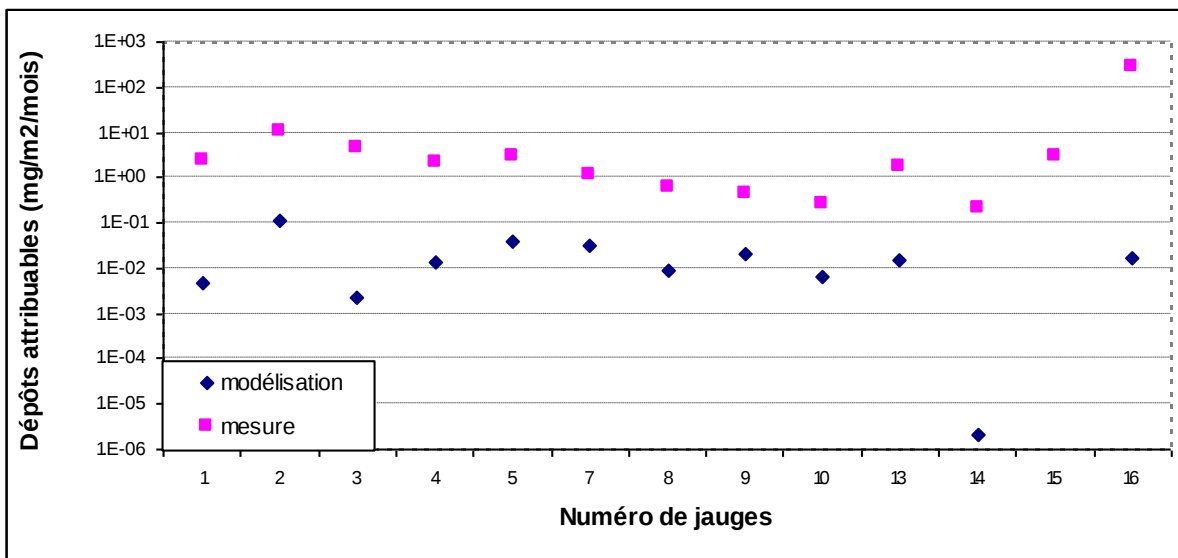
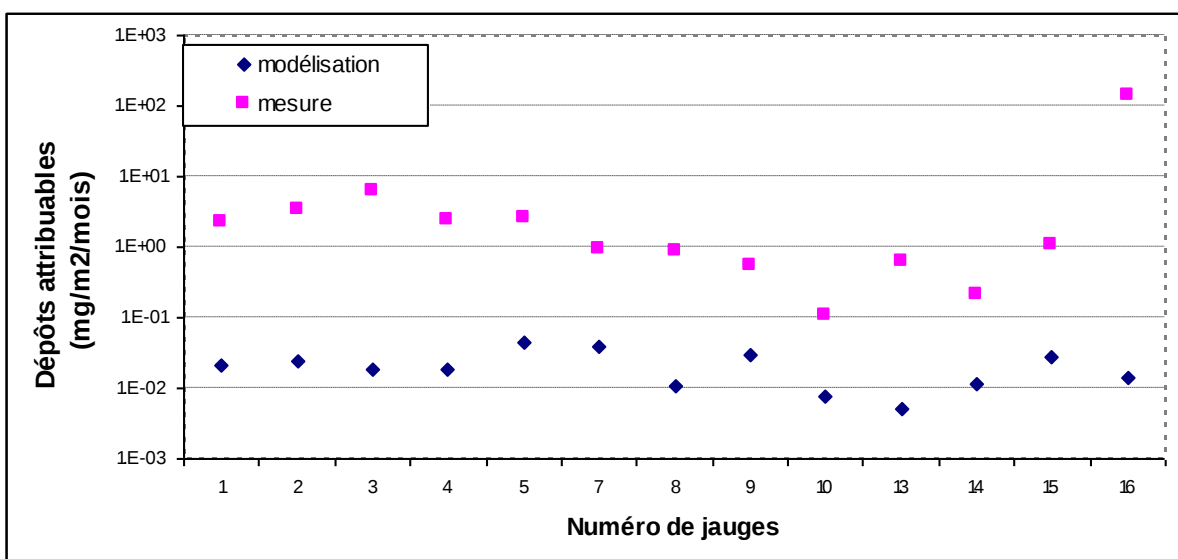


Figure 2 : Comparaison des concentrations attribuables aux émissions canalisées de l'usine issues de la mesure et des concentrations modélisées les jours de prélèvement à l'émission

Les dépôts mesurés par jauges Owen lors de la campagne menée en octobre et novembre 2005 ont également été comparés à ceux modélisés par ADMS. Même en considérant le dépôt mesuré dans les jauges les plus éloignées de l'usine (jauges 11 et 12, voir annexe 1) comme indépendant des retombées générées par celle-ci, et donc correspondant au bruit de fond, les dépôts attribuables à l'usine (dépôts mesurés moins bruit de fond) sont supérieurs de plusieurs ordres de grandeur à ceux modélisés par ADMS à partir des émissions canalisées (cf. Figure 3). Par ailleurs, il faut souligner que le rapport entre dépôts mesurés et dépôts modélisés tend à diminuer avec la distance à l'usine, car les quantités mesurées diminuent avec la distance alors que ceux modélisés restent du même ordre de grandeur (voir distance des jauges à l'usine sur la figure 1 de l'annexe 1).



(a)



(b)

Figure 3 : Comparaison des dépôts attribuables à l'usine estimés à partir de la mesure avec ceux estimés par modélisation (a) en octobre 2005, et (b) en novembre 2005

2.3 EFFET DU PARAMETRAGE

Des essais complémentaires de modélisation ont été réalisés pour vérifier qu'un mauvais paramétrage n'était pas la cause de ces différences de résultats. Des hypothèses pouvant conduire à augmenter les dépôts en champs proche ont été testées :

- une densité de particules égale à 11340 kg/m³ correspondant à du plomb pur :
- la rugosité a été augmentée de 0,2 à 0,5 (rugosité donnée pour des parcs ou banlieues dégagées) ;

- les températures et vitesse d'éjection minimales enregistrées durant l'année ont été utilisées à la place des valeurs mesurées lors du prélèvement à l'émission du mois correspondant à la mesure ;
- l'effet des bâtiments a été testé ;
- les classes granulométriques des particules ont été redéfinies à partir de l'analyse effectuée sur l'échantillon prélevé à l'amont des filtres de cheminée, en prenant en compte, soit les particules allant jusqu'à 10 μm de diamètre, soit l'ensemble du profil granulométrique.

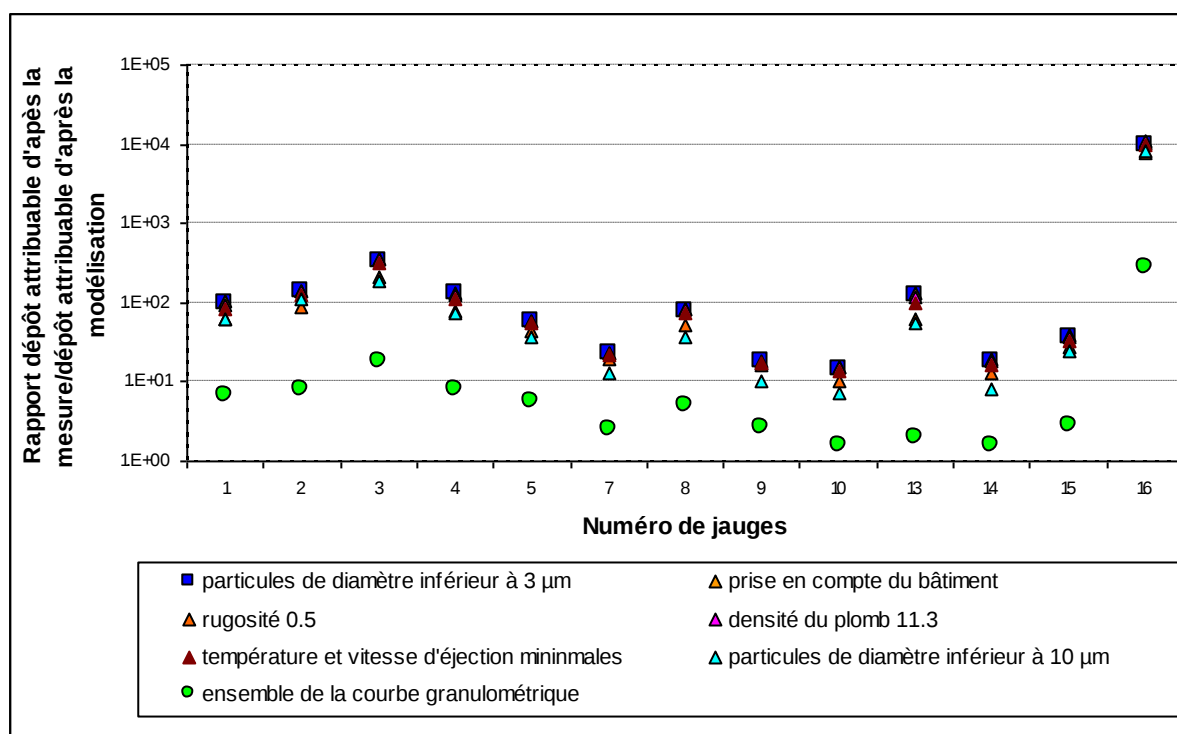


Figure 4 : Rapport entre les dépôts mesurés en novembre 2005 et les dépôts modélisés selon différentes hypothèses de calcul

En dehors de la granulométrie, les modifications apportées aux hypothèses de calcul ont peu d'impact sur les résultats de modélisation. Lorsque tout le profil granulométrique est pris en compte, les rapports entre dépôts mesurés et dépôts modélisés se rapprochent de 1, montrant le rôle important joué par les plus grosses particules. Pour la jauge 16, située à une dizaine de mètres des bâtiments, la différence de résultat reste néanmoins élevée, la modélisation adoptée étant vraisemblablement peu adéquate pour représenter les phénomènes ayant lieu à une si faible distance des bâtiments.

Ces observations indiquent qu'il existe une autre source de contamination par le plomb qui n'a pas été prise en compte lors des calculs de modélisation. Aucune autre activité génératrice d'émission de plomb n'ayant été identifiée sur Bourg-Fidèle à l'époque de ces campagnes de mesure, et compte-tenu du profil des dépôts par rapport à la distance des bâtiments de Métal-blanc (voir annexe 1, figure 2), il s'agit vraisemblablement d'émissions diffuses liées à l'activité de l'usine ou à la remise en suspension des poussières de plomb déposées au sol par le vent ou par des perturbations mécaniques. Les concentrations mesurées le week-end étant sensiblement inférieures à celles mesurées la semaine depuis 2002 (année depuis laquelle l'usine ne fonctionne plus le samedi et le dimanche) et celles mesurées en

août, mois d'arrêt de l'activité de l'usine, étant également inférieures à celles des autres mois (sauf en 2003), il semble que cette source de contamination complémentaire soit principalement due à l'usine, qu'il s'agisse d'émissions liées à la production ou au trafic routier associé à l'activité de l'usine.

3 PRISE EN COMPTE D'UNE SOURCE DIFFUSE

Pour tester cette hypothèse et essayer de quantifier le volume des émissions diffuses, des essais de calculs sous ADMS ont été conduits en utilisant une source d'émission diffuse complémentaire.

Deux cas de figure ont été testés, la prise en compte :

- d'une source volumique correspondant au volume des bâtiments de l'usine,
- d'une source surfacique correspondant aux surfaces des bâtiments et des zones goudronnées du site industriel.

Les calculs ont été menés avec :

- une température à l'émission de 15 °C dans le cas de la source volumique, et égale à la température ambiante dans le cas de la source surfacique,
- des particules de 10 µm de diamètre dans un premier cas, dix classes de particules différentes représentant l'ensemble de la courbe granulométrique, mesurée à l'amont des filtres, dans un second cas.

En prenant en compte les dépôts mesurés en octobre et novembre 2005 et une incertitude de 30 % sur les valeurs mesurées (en cohérence avec les mesures de reproductivité effectuées), le flux diffus a été estimé par la procédure des moindres carrés et le solveur d'Excel. Les dépôts modélisés à partir des émissions canalisées et le bruit de fond estimé ont été ajoutés aux dépôts calculés à partir de la source diffuse. Les résultats donnés par les quinze premières jauges ont été pris en compte dans la procédure d'estimation, mais pas ceux relatifs à la jauge 16, sujette à des fluctuations trop importantes compte tenu de son emplacement.

La prise en compte de l'ensemble de la courbe granulométrique donne les sommes de différences au carré entre dépôts mesurés et dépôts modélisés les plus faibles. Les flux diffus ainsi estimés sont égaux à :

- 1,41 mg/m²/h en octobre et à 1,73 mg/m²/h en novembre 2005 dans le cas de la source surfacique, ce qui correspond respectivement à 25 kg et 27 kg de plomb émis par mois ;
- 1,48 mg/m³/h en octobre 2005 et à 1,64 mg/m³/h en novembre 2005 dans le cas d'une source volumique, ce qui correspond respectivement à 61 kg et 73 kg de plomb émis par mois.

Dans le cas d'un renouvellement d'air de 10 volumes horaires, la concentration en plomb correspondant à ce flux volumique, à l'intérieur du bâtiment, serait de l'ordre de 0,2 mg/m³. Bien que les informations sur la concentration de plomb dans l'air intérieur n'aient pu être obtenues, elle est, selon l'industriel, effectivement supérieure à la valeur moyenne réglementaire pour les travailleurs, à savoir 0,1 mg/m³.

Par ailleurs, abstraction faite du problème d'ordre de grandeur des dépôts, il convient de remarquer que les profils de dépôts obtenus en intégrant une source diffuse surfacique ou volumique, sont plus proches de celui mesuré que le flux correspondant à une modélisation basée sur les seuls flux canalisés de plomb.

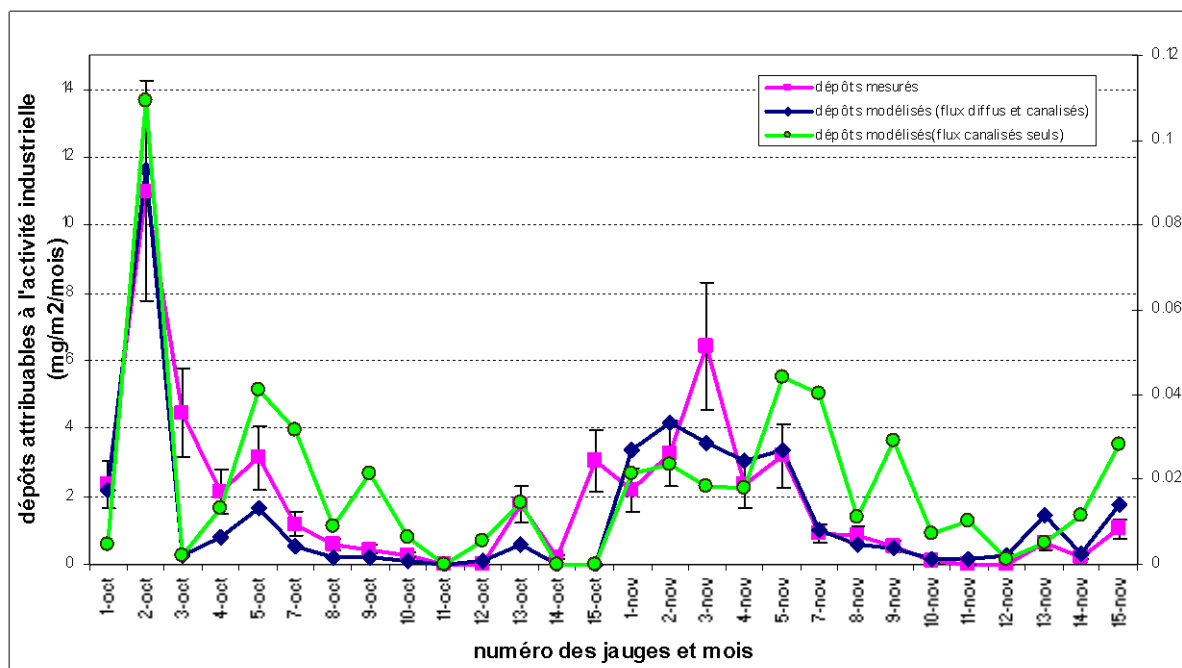


Figure 3 : Dépôts mesurés et calculés en octobre et novembre 2005 (les dépôts mesurés et ceux calculés à partir de la somme des flux canalisés et diffus se lisent sur l'échelle des ordonnées de gauche, les valeurs de dépôts modélisés à partir des seuls flux canalisés se lisent sur l'échelle de droite)-cas d'une source diffuse de type volumique

Les estimations sur les quantités de plomb émis de manière diffuse sont à rapprocher des estimations de plomb émis sous forme canalisée en octobre et novembre 2005, à savoir respectivement 19 et 11 kg.

Les quantités de plomb diffus estimées présentent toutefois une variabilité sensible selon les hypothèses prises en compte, la granulométrie des particules a ainsi un impact fort sur les résultats de l'estimation. Même si une confiance limitée doit être accordée aux valeurs estimées, l'ensemble des observations sur les concentrations et les dépôts mesurés et les comparaisons réalisées avec la modélisation démontrent le rôle important des émissions diffuses dans la contamination, cela malgré les mesures mises en place à la demande de la DRIRE pour maîtriser les émissions diffuses.

4 DEFINITION D'UN MODELE STATISTIQUE DES DEPOTS DE PLOMB AU SOL

La modélisation des expositions rendant nécessaire l'estimation des dépôts de plomb au sol et la modélisation inverse n'apportant qu'une estimation très incertaine du flux total de plomb émis, une relation statistique permettant d'estimer les dépôts mensuels totaux de plomb au sol en un point en fonction de paramètres connus a été recherchée.

Les paramètres d'entrée qui ont été considérés sont :

- la distance aux cheminées,
- la distance aux bâtiments de l'usine,
- les flux canalisés de plomb émis,
- la fréquence du vent à laquelle le vent souffle des cheminées ou des bâtiments vers le point considéré,
- la fréquence des vents forts, moyens et faibles à laquelle le vent souffle des cheminées ou des bâtiments vers le point considéré.

Des relations linéaires, log-log et fonction inverse de la distance ont été testées. Le coefficient de corrélation le plus élevé et l'erreur résiduelle la plus faible ont été obtenus pour la relation suivante :

$$\log \text{dep} = 0,35 - 0,17 \cdot 10^{-3} \times D + 1,31 \times W + 1,4 \cdot 10^{-5} \times E$$

avec dep : quantité totale de plomb déposé par mois ($\text{mg}/\text{m}^2/\text{mois}$),

W : fréquence du vent soufflant de l'usine vers le point considéré (-),

D : distance des bâtiments de l'usine au point considéré (m),

E : quantité mensuelle de plomb émise aux cheminées (g/mois).

Le coefficient de détermination (r^2) est égal à 0,93 et l'écart-type résiduel vaut 0,12 pour cette relation.

La distinction entre différentes classes de vent, selon leur force, n'améliore pas la relation. Les quatre coefficients de cette relation sont significativement différents de zéro.

La normalité et l'homoscédasticité des résidus ont été testés (cf. Figure 5 et Figure 6). Même si la dispersion des résidus tend à augmenter quand la distance au site diminue, et donc quand les dépôts augmentent, l'utilisation d'une approche par moindres carrés pondérés n'améliore pas le caractère prédictif de la relation. Cette relation a donc été conservée.

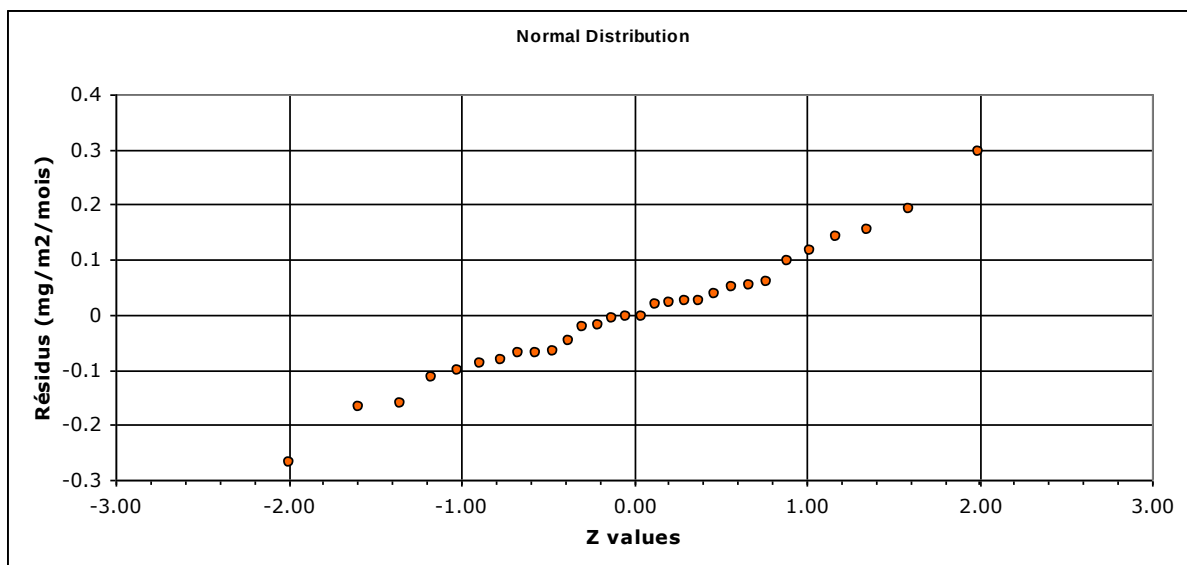


Figure 5 : Test de la normalité des résidus

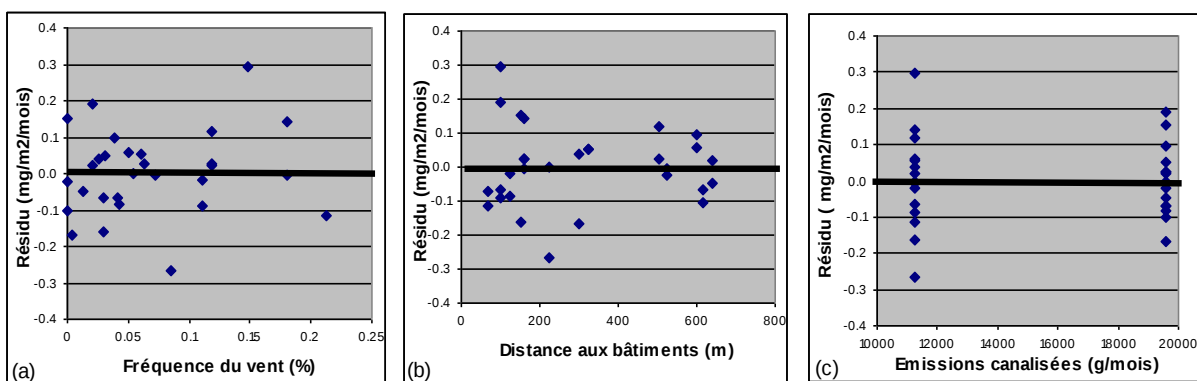


Figure 6 : Test de l'homoscédasticité des résidus

ANNEXE 5

DEFINITION DES PARAMETRES D'ENTREE DE LA MODELISATION

TABLE DES MATIERES

1	INTRODUCTION.....	7
2	VALEURS DE PARAMETRES UTILISEES DANS LE CADRE DE LA COMPARAISON DES CHAINES DE MODELISATION SUR LE CAS TYPE	8
2.1	Le terme source	9
2.1.1	Les dépôts atmosphériques.....	9
2.1.2	Les concentrations dans le sol.....	10
2.1.3	Les concentrations dans l'air	10
2.1.4	Les concentrations dans l'eau	11
2.1.4.1	Concentration dans l'eau d'arrosage	11
2.1.4.2	Concentration de plomb dans l'eau du robinet	12
2.2	Les paramètres environnementaux	12
2.2.1	Paramètres relatifs aux sols.....	12
2.2.1.1	Epaisseur des couches de sol.....	12
2.2.1.2	Teneur en eau du sol.....	13
2.2.1.3	Masse volumique apparente	13
2.2.2	Paramètres relatifs aux végétaux	14
2.2.2.1	Rendement culturel	14
2.2.2.2	Durée de croissance.....	15
2.2.2.3	Constante de décroissance	16
2.2.2.4	Fraction interceptée.....	17
2.2.2.5	Fraction du dépôt humide qui adhère à la surface des plantes	18
2.2.2.6	Teneur en matière sèche.....	18
2.2.2.7	Taux d'irrigation des légumes-feuilles	19
2.2.3	Autres paramètres environnementaux.....	19
2.2.3.1	Vitesse de dépôt des particules remises en suspension	19
2.2.3.2	Concentration de particules en suspension dans l'air	20
2.2.3.3	Pluviométrie.....	20
2.2.3.4	Evapotranspiration.....	21
2.3	Paramètres d'exposition	21
2.3.1	Paramètres relatifs aux animaux	21

2.3.1.1	Quantités d'aliments consommés.....	21
2.3.1.2	Quantité de sol ingéré	22
2.3.2	Paramètres relatifs aux enfants	23
2.3.2.1	Consommations alimentaires	23
2.3.2.2	Masse corporelle	26
2.3.2.3	Ingestion de sol	27
2.3.2.4	Taux d'autoconsommation	31
2.3.2.5	Nombre de jours d'exposition	32
2.3.2.6	Autres paramètres d'exposition relatifs aux enfants	32
2.4	Paramètres de transfert du plomb dans l'environnement	34
2.4.1	Méthode de définition	35
2.4.2	Résultats.....	36
2.4.2.1	Coefficient de partage particules du sol-eau du sol (K_d).....	36
2.4.2.1.1	Analyse des travaux de l'US EPA	36
2.4.2.1.2	Analyse de publications primaires et définition d'une distribution statistique	36
2.4.2.1.3	Données retenues	39
2.4.2.2	Coefficients de transfert sol-plante	39
2.4.2.2.1	Travaux de synthèse disponibles	39
2.4.2.2.2	Analyses des données collectées	40
2.4.2.2.3	Données retenues	40
2.4.2.3	Coefficient de transfert vers le lait	49
2.4.2.4	Coefficient de transfert vers la viande de boeuf	53
2.4.2.5	Facteur de bioconcentration pour les autres matrices animales.....	58
2.5	Paramètres d'absorption	62
2.5.1	Taux de biodisponibilité relative à partir du sol	62
2.5.2	Taux d'absorption par ingestion.....	65
2.5.3	Taux d'absorption par inhalation.....	66
2.5.4	Fraction de l'absorption par voie passive à faible dose	66
3	VALEURS DES PARAMETRES UTILISEES POUR LA COMPARAISON DES NIVEAUX D'EXPOSITION MODELISES AVEC LES NIVEAUX D'EXPOSITION MESURES	67
3.1	Le terme source	67
3.1.1	Modèle A.....	67
3.1.1.1	Le flux d'émission.....	67

3.1.1.1.1	Estimation des émissions atmosphériques de plomb pour la comparaison des plombémies mesurées en 2002 avec les plombémies modélisées	67
3.1.1.1.2	Estimation des émissions atmosphériques de plomb pour la comparaison des concentrations mesurées dans les végétaux de 2002 à 2005 avec les concentrations modélisées	69
3.1.1.2	Les concentrations dans le sol	70
3.1.1.3	Les concentrations dans l'air	70
3.1.2	Modèle B.....	70
3.1.2.1	Les dépôts atmosphériques	70
3.1.2.1.1	Estimation des dépôts de plomb au sol pour la comparaison des plombémies mesurées en 2002 avec les plombémies modélisées	70
3.1.2.1.2	Estimation des dépôts de plomb au sol pour la comparaison des concentrations mesurées dans les végétaux de 2002 à 2005 avec les concentrations modélisées	71
3.1.2.2	Les concentrations dans le sol	71
3.1.2.2.1	Estimation des concentrations dans les sols pour la comparaison des plombémies mesurées en 2002 avec les plombémies modélisées	71
3.1.2.2.2	Estimation des concentrations dans les sols pour la comparaison des concentrations mesurées dans les végétaux de 2002 à 2005 avec les concentrations modélisées	72
3.1.2.3	Les concentrations dans l'air	72
3.2	Paramètres du plomb	72
3.2.1	Modèle A.....	72
3.2.2	Modèle B.....	73
3.3	Paramètres environnementaux	73
3.3.1	Modèle A.....	73
3.3.2	Modèle B.....	73
3.4	Paramètres d'exposition	73
3.4.1	Quantité de sol ingéré.....	73
3.4.2	Taux d'autoconsommation.....	74
3.4.3	Exposition ubiquitaire par l'alimentation.....	75
4	REFERENCES.....	76

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Valeur et distribution utilisées pour la concentration dans les sols dans le cas type.....	10
Tableau 2 : Valeurs et distributions utilisées pour les concentrations de plomb dans l'air	11
Tableau 3 : Valeur et distribution utilisées pour les concentrations de plomb dans l'eau d'arrosage	12
Tableau 4 : Valeur et distribution utilisées pour les concentrations de plomb dans l'eau du robinet	12
Tableau 5 : Valeurs et distributions utilisées pour l'épaisseur des couches de sol...	13
Tableau 6 : Valeurs et distributions utilisées pour la teneur en eau des couches de sol.....	13
Tableau 7 : Valeurs et distributions utilisées pour la masse volumique apparente...	14
Tableau 8 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour le rendement culturel.....	15
Tableau 9 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour la durée de croissance	16
Tableau 10 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour la constante de décroissance	17
Tableau 11 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour la fraction interceptée.....	18
Tableau 12 : Valeur et distribution utilisées pour la fraction du dépôt humide qui adhère à la surface des plantes.....	18
Tableau 13 : Valeurs et distributions utilisées pour la teneur en matière sèche	19
Tableau 14 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'irrigation	19
Tableau 15 : Valeur et distribution utilisées pour la vitesse de dépôt des particules remises en suspension.....	20
Tableau 16 : Valeur et distribution utilisées pour la concentration de particules remises en suspension.....	20
Tableau 17 : Valeur et distribution utilisées pour la pluviométrie	21
Tableau 18 : Valeur et distribution utilisées pour l'évapotranspiration	21
Tableau 19 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour les consommations alimentaires des animaux.....	22
Tableau 20 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour les quantités de sol ingéré par les animaux	23
Tableau 21 : Valeurs déterministes utilisées pour les quantités d'aliments consommés par les enfants des différentes classes d'âge.....	25

Tableau 22 : Valeurs et distributions utilisées pour les masses corporelles des enfants.....	27
Tableau 23 : Valeurs et distributions utilisées pour les quantités de sol ingérés par les enfants	31
Tableau 24 : Facteur de pondération utilisé en fonction de l'âge.....	31
Tableau 25 : Valeurs et distributions utilisées pour les taux d'autoconsommation ...	32
Tableau 26 : Valeur et distribution utilisées pour le nombre de jours d'exposition....	32
Tableau 27 : Valeurs et distributions utilisées pour les niveaux d'exposition ubiquitaires et la consommation d'eau journalière	33
Tableau 28 : Valeurs et distributions utilisées pour les taux d'inhalation	33
Tableau 29 : Valeur et distribution utilisées pour la plombémie de la mère	34
Tableau 30 : Valeurs de K_d calculées à partir des publications originales et notation.....	38
Tableau 31 : Valeur et distribution de K_d (l/kg) utilisées.....	39
Tableau 32 : Données collectées pour les légumes-feuilles et notation	42
Tableau 33 : Données collectées pour les légumes-fruits et les fruits et notation	43
Tableau 34 : Données collectées pour les légumes-racines et notation.....	44
Tableau 35 : Données collectées pour le fourrage et notation	45
Tableau 36 : Données collectées pour les céréales et notation.....	48
Tableau 37 : Valeurs et distributions des K_{ps} ($\text{mg.kg}^{-1} \text{ sec}/(\text{mg.kg}^{-1} \text{ sec})^{-1}$) utilisées.....	49
Tableau 38 : Valeurs de B_l calculées à partir des publications et notation	52
Tableau 39 : Valeurs et distributions de B_l utilisées.....	53
Tableau 40 : Valeurs de B_v calculées à partir des publications et notation.....	56
Tableau 41 : Valeurs et distributions de B_v utilisées	58
Tableau 42 : Valeurs de BCF calculées à partir des publications et notation	60
Tableau 43 : Valeurs et distributions de BCF utilisées	62
Tableau 44 : Valeurs de B_s collectées	63
Tableau 45 : Valeur et distribution utilisées pour le taux de biodisponibilité relative à partir du sol	65
Tableau 46 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'absorption par ingestion	66
Tableau 47 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'absorption par inhalation	66
Tableau 48 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'absorption par voie passive	66
Tableau 49 : Distribution utilisée pour représenter le flux total de plomb émis dans l'atmosphère par jour pour l'estimation des plombémies en 2002	69

Tableau 50 : Distribution utilisée pour représenter le flux total de plomb émis dans l'atmosphère par jour pour l'estimation des concentrations de plomb dans les végétaux prélevés entre 2002 et 2005	70
Tableau 51 : Distribution définie pour K_d , à partir des données de l'Office of Air and Radiation (US EPA, 1999 d) et du pH des sols analysés à Bourg-Fidèle	72
Tableau 52 : Distribution utilisée pour la quantité de sol ingéré (en mg/j) pour la comparaison des plombémies modélisées par rapport aux plombémies mesurées.....	74
Tableau 53 : Distributions utilisées pour les taux d'autoconsommation de chaque enfant	74

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Principe de construction de la distribution pour la quantité de sol ingéré	30
Figure 2 : Taux de biodisponibilité relative en fonction de la spéciation du plomb....	64
Figure 3 : Taux de biodisponibilité relative en fonction de la nature du substrat.....	64
Figure 4 : Ajustement de la distribution des valeurs de Bs retenues à une distribution lognormale	65

1 INTRODUCTION

Des valeurs ponctuelles (déterministes) et des distributions statistiques pour chacun des paramètres d'entrée des modèles multimédia et de IEUBK ont été définies. Cette annexe présente ces données et les éléments à partir desquels elles ont été déterminées.

Dans une première partie, ce document passe en revue les paramètres utilisés pour les travaux menés sur le cas type. Les paramètres ayant dû faire l'objet d'une définition spécifique dans le cadre de la comparaison mesures/modèles sont traités ensuite.

Dans l'ensemble du document, les conventions suivantes ont été adoptées pour représenter les distributions utilisées :

- U (X1 ; X2) désigne une distribution uniforme avec X1 : borne inférieure et X2 : borne supérieure,
- T (X1 ; X2 ; X3) désigne une distribution triangulaire avec X1 : borne inférieure ; X2 : valeur modale ; X3 : borne supérieure,
- N (X1 ; X2 ; X3 ; X4) désigne une distribution normale avec X1 : moyenne, X2 : écart-type et éventuellement dans le cas d'une distribution bornée X3 : borne inférieure ; X4 : borne supérieure,
- LN (X1 ; X2 ; X3 ; X4) désigne une distribution lognormale avec X1 : moyenne, X2 : écart-type et éventuellement dans le cas d'une distribution bornée X3 : borne inférieure ; X4 : borne supérieure,
- CUM : distribution cumulée avec définition des valeurs affectées à différents percentiles de la distribution cumulée.

2 VALEURS DE PARAMETRES UTILISEES DANS LE CADRE DE LA COMPARAISON DES CHAINES DE MODELISATION SUR LE CAS TYPE

Les paramètres d'entrée à définir peuvent être classés en différentes catégories :

- les paramètres décrivant les sources de contamination (les dépôts atmosphériques, les concentrations dans le sol, dans l'air et dans les eaux) (paragraphe 2.1),
- les paramètres caractérisant les milieux environnementaux (paramètres du sol, paramètres climatiques, paramètres relatifs aux végétaux, ...) (paragraphe 2.2),
- les paramètres d'exposition décrivant les modalités de l'exposition des animaux et des enfants (paragraphe 2.3),
- les paramètres de transfert du plomb dans l'environnement. Un effort particulier a été réalisé pour redéfinir ces paramètres. Une analyse à partir d'articles scientifiques originaux a été réalisée pour réévaluer les valeurs à attribuer aux coefficients de partage particules du sol-eau du sol, aux coefficients de transfert sol-plante, et aux coefficients de transfert vers la viande et le lait (paragraphe 2.4),
- les paramètres d'absorption. Ces paramètres permettent d'estimer la dose d'exposition interne, c'est-à-dire ici la plombémie, à partir de la dose d'exposition externe (paragraphe 2.5).

La présentation des paramètres environnementaux et des paramètres d'exposition adoptée dans ce chapitre correspond à la liste des paramètres à renseigner pour le modèle INERIS, car, dans cette étude, c'est le modèle multimédia qui compte le plus de milieux d'exposition.

Certaines des valeurs et des distributions de paramètres fournies ci-dessous ne sont donc pas applicables aux autres modèles. Ainsi, les paramètres relatifs à la couche de sol servant de support à l'herbe de pâturage (couche 2, cf. paragraphe 2.2.1) ne concernent que le modèle INERIS. Les paramètres définis pour la couche de sol superficiel (couche 1) et la couche de sol racinaire (couche 3) sont, en revanche, utilisés pour les trois autres modèles.

A l'inverse, certains paramètres n'apparaissent que dans le module de transfert de CalTOX. C'est le cas des paramètres relatifs au compartiment « sédiments » (comme la porosité de la couche sédimentaire) ou à certains paramètres du ou des compartiments décrivant les végétaux (comme la masse volumique des végétaux ou la fraction volumique des lipides dans la feuille). Les valeurs et distributions définies par défaut dans le modèle original ont été réutilisées et ces données ne sont pas décrites dans cette annexe.

Enfin, HHRAP, CalTOX 2.3 et CalTOX 4 faisant appel à des catégories de produits végétaux et animaux moins détaillées que le modèle INERIS, des moyennes pondérées ont été effectuées pour renseigner les paramètres de ces modèles à partir des valeurs et distributions définies ci-dessous.

2.1 LE TERME SOURCE

2.1.1 LES DEPOTS ATMOSPHERIQUES

Le dépôt total de plomb au sol est estimé à partir du modèle statistique basé sur la distance du point étudié aux bâtiments de l'usine, la fréquence des vents soufflant de l'usine vers ce point et les quantités de plomb émises par les cheminées pendant la période prise en compte.

$$\log dep(D, W, E) = 0,35 - 1,7 \cdot 10^{-3} \times D + 1,31 \times W + 1,4 \cdot 10^{-5} \times E \quad (1)$$

avec dep : quantité totale de plomb déposé par mois (mg/m²/mois),

W : fréquence du vent soufflant de l'usine vers le point considéré (-),

D : distance des bâtiments de l'usine au point considéré (m),

E : quantité mensuelle de plomb émise aux cheminées (g/mois).

L'annexe 4 présente les conditions dans lesquelles cette relation statistique a été établie.

Les incertitudes liées aux valeurs de dépôts prédites grâce à la relation (1) ont été estimées selon l'expression suivante :

$$\log dep(D, W, E) = 0,35 - 1,7 \cdot 10^{-3} \times D + 1,31 \times W + 1,4 \cdot 10^{-5} \times E + T \times \sqrt{\text{Var}(\log dep)}$$

avec T : statistique de Student à 26 degrés de liberté

$$\text{et Var}(\log dep) = X_p^T \times \left[\sigma^2 \times (X^T \times X)^{-1} \right] \times X_p$$

σ^2 : écart-type résiduel,

X_p : vecteur des données d'entrée correspondant au dépôt à prédire,

X : matrice de dimensions 5 x 30, définie à partir des données d'entrée du jeu de données initiales sur les dépôts.

$$\text{Matrice de la forme suivante : } \begin{pmatrix} 1 & D_1 & W_1 & E_1 \\ 1 & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ 1 & D_{30} & W_{30} & E_{30} \end{pmatrix}$$

Pour le développement du cas type, le point d'étude retenu est celui correspondant au dispositif de prélèvement d'air en continu (Partisol) implanté par l'industriel. Ce point présente l'avantage d'être à la fois proche du site et donc d'être fortement exposé, et proche d'habitations. Il s'agit aussi du seul point pour lequel on dispose des concentrations dans l'air, ce qui permet une meilleure appréciation des expositions, même s'il est pressenti que l'exposition par inhalation représente une part très faible de l'exposition globale. Ce point se situe à 89 mètres des murs de l'usine. Ses coordonnées dans le système Lambert II sont X=758231 et Y=2545850.

La période de référence prise en compte pour l'estimation du dépôt au sol est celle allant du 1^{er} janvier 2002 (date à partir de laquelle l'activité et les quantités

émises ont été réduites) au 15 juin 2002 (date du début de la campagne de plombémie). Cette période est considérée comme représentative des conditions d'exposition pour un fonctionnement normal de l'usine, aucun dépassement des valeurs limites à l'émission n'ayant été relevé sur cette période.

Sur cette période, les émissions moyennes des 4 cheminées sont de 1839 g/mois et le vent a soufflé 20,4% du temps vers le Partisol. Le modèle statistique permet donc d'estimer un dépôt mensuel moyen de 3,1 mg/m²/mois sur cette période (soit un dépôt annuel moyen de 36,8 mg/m²/an).

2.1.2 LES CONCENTRATIONS DANS LE SOL

Dans le cadre de la comparaison des chaînes de modélisation sur le cas type, les quotients de danger calculés correspondent au quotient de danger attribuable à l'installation. Pour que ce cas type soit représentatif des situations le plus souvent traitées dans les évaluations de risque réalisées dans le cadre des études d'impact, seul l'impact lié aux émissions actuelles et futures de l'usine est pris en compte. L'impact lié aux émissions ayant eu lieu au cours des décennies passées et qui se traduit par la contamination des sols n'est pas pris en compte à ce niveau.

En revanche, l'estimation de la plombémie devant intégrer l'exposition liée à l'activité du site et l'exposition liée à la présence ubiquitaire de plomb dans l'environnement, une concentration ubiquitaire de plomb dans les sols a été définie. Cette concentration de plomb s'ajoute à celle estimée par le modèle du fait des dépôts actuels et futurs de l'usine pour évaluer l'exposition des enfants par ingestion de plomb.

D'après les données de Juste *et al.* (1995), les concentrations de plomb couramment observées dans les sols "ordinaires" sont comprises entre 5 et 60 mg/kg sec. D'après la base de données BT ETM (Baize, 2007), la médiane et la valeur maximale des concentrations de plomb mesurées dans les sols agricoles dans le département des Ardennes sont respectivement égales à 21 et 56 mg/kg des concentrations. Au niveau national, la médiane est égale à 25,6 mg/kg.

La distribution définie pour cet exercice est une distribution normale centrée sur la concentration mesurée au point de prélèvement le plus éloigné de l'usine et considéré comme représentatif du bruit de fond local. La concentration mesurée sur la couche 0-2 cm est égale à 31,3 mg/kg. L'écart-type de la distribution a été défini à partir d'un coefficient de variation de 15 % correspondant à l'incertitude attachée à la procédure analytique.

Tableau 1 : Valeur et distribution utilisées pour la concentration dans les sols dans le cas type

Valeur déterministe	31,3
Distribution statistique	N (31,3 ; 4,7) (1)

(1) : borne inférieure égale à 0

2.1.3 LES CONCENTRATIONS DANS L'AIR

La concentration moyenne mesurée du 1^{er} janvier 2002 au 15 juin 2002 a été utilisée. Le réseau ATMO Champagne-Ardenne n'ayant pas précisé l'erreur de

mesure sur les valeurs relevées, une distribution triangulaire a été attribuée à la concentration dans l'air avec pour :

- valeur modale, la valeur moyenne calculée à partir du relevé journalier des concentrations, soit $2,7 \cdot 10^{-4} \text{ mg/m}^3$,
- valeur minimale, une valeur égale à 90 % de la valeur modale,
- valeur maximale, une valeur égale à 110 % de la valeur modale.

Compte-tenu des incertitudes analytiques données par le laboratoire de l'INERIS (un coefficient de variation de 5% sur le dépôt retenu sur la membrane de prélèvement), l'incertitude ci-dessus pour la concentration dans l'air paraît élevée, toutefois ce paramètre ayant un impact peu sensible sur le résultat, cette surestimation de l'incertitude sur la concentration inhalée est sans conséquence.

En outre, une concentration de plomb ubiquitaire dans l'air a été définie pour tenir compte, dans le calcul des niveaux de plombémie, des conditions d'exposition lorsque les enfants sont en dehors du site.

La concentration moyenne dans les villes est égale à 30 ng/m^3 (Ministère de l'Ecologie du Développement Durable, 2006) et des valeurs comprises entre $0,07$ à $5,4 \text{ ng/m}^3$ sont données pour l'Antarctique (valeurs rapportées dans Ponserre, 2006). Sur cette base, une distribution triangulaire, présentée dans le tableau suivant, a été retenue.

Tableau 2 : Valeurs et distributions utilisées pour les concentrations de plomb dans l'air

	Concentration prise en compte dans le village	Concentration ubiquitaire
Valeur déterministe (mg/m^3)	$2,7 \cdot 10^{-4}$	0
Distribution statistique (mg/m^3)	T ($2,4 \cdot 10^{-4}$; $2,7 \cdot 10^{-4}$; $2,9 \cdot 10^{-4}$)	T (10^{-5} , $5 \cdot 10^{-6}$, $3 \cdot 10^{-5}$)

2.1.4 LES CONCENTRATIONS DANS L'EAU

2.1.4.1 CONCENTRATION DANS L'EAU D'ARROSAGE

La contamination du sol par une eau d'irrigation issue d'une ressource superficielle ou souterraine polluée n'est pas considérée dans notre étude. En revanche, la contamination des légumes-feuilles par dépôt direct d'eau sur ces végétaux lors de l'arrosage est prise en compte dans le modèle INERIS.

Lors de la campagne d'échantillonnage de sols réalisée sur Bourg-Fidèle, il s'est avéré que beaucoup d'habitants possédant un jardin potager récupéraient l'eau de ruissellement des toits pour arroser leur potager.

Quatre prélèvements d'eau ont été réalisés chez des habitants différents. Les concentrations mesurées dans ces eaux étaient comprises entre $2,8$ et $20,6 \text{ mg/l}$ (cf. annexe 1).

Une distribution uniforme a été affectée à ce paramètre. La moyenne des concentrations relevées a été utilisée comme valeur déterministe.

Tableau 3 : Valeur et distribution utilisées pour les concentrations de plomb dans l'eau d'arrosage

Valeur déterministe (mg/l)	7
Distribution statistique (mg/l)	U (2 ; 25)

2.1.4.2 CONCENTRATION DE PLOMB DANS L'EAU DU ROBINET

Enfin, pour le calcul des plombémies, une concentration de plomb dans l'eau du robinet a été considérée. D'après les données de la base SISE-EAUX exploitées par Glorennec (2006), la distribution des concentrations de plomb au robinet du consommateur est très étalée vers la droite avec une concentration au 75^{ème} percentile inférieure à 10^{-3} mg/l et une concentration maximale égale à 0,72 mg/l.

En l'absence de données spécifiques au site et pour éviter de définir un cas type se rapportant à des situations particulières liées à l'existence de canalisations en plomb, une distribution uniforme a été définie par défaut avec pour borne inférieure 0 et pour borne supérieure la moitié de la valeur maximale autorisée par la réglementation, soit 5.10^{-3} mg/l.

Par ailleurs, il convient de noter que sur la commune de Bourg-Fidèle, d'après le questionnaire rempli lors du dépistage, la plupart des enfants ayant fait l'objet d'une recherche de plombémie ne buvaient que de l'eau en bouteille.

Tableau 4 : Valeur et distribution utilisées pour les concentrations de plomb dans l'eau du robinet

Valeur déterministe (mg/l)	5.10^{-3}
Distribution statistique (mg/l)	U (0; 5.10^{-3})

2.2 LES PARAMETRES ENVIRONNEMENTAUX

Les distributions ont été définies en confrontant les valeurs utilisées dans les jeux de données de différentes sources bibliographiques.

2.2.1 PARAMETRES RELATIFS AUX SOLS

2.2.1.1 EPAISSEUR DES COUCHES DE SOL

Des distributions triangulaires ont été définies pour trois couches de sol¹.

La première couche de sol, celle entrant en jeu dans le cas de l'ingestion directe de sol par les enfants et les animaux est très superficielle. La distribution retenue s'appuie sur les valeurs par défaut retenues dans CalTOX et HHRAP (1 et 2 cm).

La deuxième couche correspond à la zone servant de support à l'herbe de pâturage. La définition des valeurs retenues s'appuie sur le jugement d'experts.

1 : Comme indiqué dans l'annexe 3, il ne s'agit pas de couches de sol superposées mais de « zones de dilution » différentes selon la voie d'exposition considérée.

Pour la troisième couche, celle servant de support aux cultures, la distribution statistique a été définie en référence aux valeurs classiquement retrouvées dans les modèles multimédia (de 20 à 30 cm). Elle est identique à celle retenue par le GRNC (2002).

Tableau 5 : Valeurs et distributions utilisées pour l'épaisseur des couches de sol

	Couche 1	Couche 2	Couche 3
Valeur déterministe (m)	0,01	0,1	0,2
Distribution statistique (m)	T (0,005; 0,01 ; 0,02)	T (0,05; 0,1 ; 0,15)	T (0,1; 0,2 ; 0,3)

2.2.1.2 TENEUR EN EAU DU SOL

La composition granulométrique de 3 sols superficiels et de 13 sols de jardin prélevés sur Bourg-Fidèle a été déterminée. Ces sols sont de type limoneux, allant d'une texture limono-sableuse à limono-argileuse.

Des distributions uniformes ont donc été définies pour chaque couche, en s'appuyant sur les teneurs en eau correspondant aux capacités au champ et aux points de flétrissement de sols limoneux.

Kostecki (1990) et ENSP (1995) donnent :

- une capacité au champ comprise entre 0,22 à 0,3 pour des sols définis comme des limons sablo-argileux, des limons argileux ou des limons silteux,
- un point de flétrissement allant de 0,11 à 0,13 pour des sols limono-sablo-argileux, et limono-argileux.

Un coefficient de corrélation de 0,8 a été fixé (arbitrairement) entre la teneur en eau de la première et celle de la troisième couche et entre celle de la deuxième et celle de la troisième couche.

Tableau 6 : Valeurs et distributions utilisées pour la teneur en eau des couches de sol

	couche 1	Couche 2	Couche 3
Valeur déterministe (-)	0,2	0,24	0,27
Distribution statistique (-)	U (0,15 ; 0,30) (1)(2)	U (0,22 ; 0,30) (1)	U (0,22 ; 0,30) (2)

(1) : distributions corrélées par un coefficient de 0,8

(2) : distributions corrélées par un coefficient de 0,8

2.2.1.3 MASSE VOLUMIQUE APPARENTE

Elle a été définie en tenant compte d'une masse volumique des particules du sol égale à 2500 kg/m³ et d'une porosité du sol comprise entre 40 et 50 % (Benslimane, 1997, Kostecki, 1970).

Des distributions uniformes ont été affectées à ce paramètre et des coefficients de corrélation de 0,8 utilisés entre le paramètre de la première et celui de la troisième couche et entre celui de la deuxième et celui de la troisième couche.

Tableau 7 : Valeurs et distributions utilisées pour la masse volumique apparente

	Couche 1	Couche 2	Couche 3
Valeur déterministe (kg/m ³)	1400	1400	1400
Distribution statistique (kg/m ³)	U (1250 ; 1500) * #	U (1350 ; 1500) *	U (1250 ; 1500) #

* : distributions corrélées par un coefficient de 0,8

: distributions corrélées par un coefficient de 0,8

2.2.2 PARAMETRES RELATIFS AUX VEGETAUX

Les différents modèles multimédia utilisés ne comportant pas les mêmes classes de végétaux, les paramètres des modèles CalTOX et HHRAP, ont été renseignés en calculant des moyennes pondérées à partir des valeurs définies pour les différentes classes décrites dans le modèle INERIS et présentées ci-dessous.

Par exemple, dans CalTOX, la catégorie « végétaux exposés » correspond à la fois aux catégories légumes-feuilles, légumes-fruits et fruits du modèle INERIS. Les paramètres relatifs aux végétaux exposés dans CalTOX ont donc été estimés à partir de la moyenne des valeurs définies pour les légumes-feuilles, les légumes-fruits et les fruits pondérées respectivement par les quantités consommées par les enfants pour chacun de ces trois types de végétaux.

2.2.2.1 RENDEMENT CULTURAL

Ce paramètre est utilisé pour estimer le dépôt de polluant particulaire sur les végétaux poussant au-dessus du sol et sans enveloppe de protection (légumes-feuilles, certains légumes-fruits et certains fruits, ensilage et fourrage).

Ce paramètre correspond à la masse sèche de végétaux consommables par unité de surface. Pour une culture de légumes-fruits, il s'agit donc de la masse de légumes produits par unité de surface cultivée et non du poids de biomasse végétale produite par la culture par unité de surface.

Quatre sources de données ont été consultées : Groupe Chimique Nord-Cotentin (GCNC, 2002), Groupe Radioécologique Nord-Cotentin (GRNC, 2002), U.S. Department of Energy (US DOE, 2004), US Environmental Protection Agency, US EPA, 2005). Les valeurs issues du premier et du dernier document n'ont pas été utilisées, car il s'agit de données agglomérées et pas de données correspondant à des espèces végétales spécifiques.

En présence de plusieurs données pour une même espèce, la moyenne a été calculée. Les valeurs exprimées en poids frais ont été transformées en poids sec, en les multipliant par la teneur en matière sèche de l'espèce correspondante.

Compte-tenu de la dispersion des données, une distribution uniforme a été définie pour chaque catégorie de végétaux à partir des valeurs minimales et maximales calculées. La valeur ponctuelle utilisée dans les estimations déterministes correspond à la moyenne des valeurs relevées pour chaque catégorie de végétal.

Tableau 8 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour le rendement cultural

Référence	Légumes-feuilles	Légumes-fruits	Fruits	Fourrage	Ensilage
GCNC, 2002 (kg frais/m ²)	1,5	2		1,5	5
GRNC, 2002 (kg frais/m ²) (1)	T (0,5 ; 2,75 ; 5)			distribution correspond au rendement cultural sur un an	T (4,5 ; 6 ; 7,5)
US DOe, 2004 (kg frais/m ²)	7 valeurs allant de 1,46 à 7,79	3 valeurs allant de 3,0 à 3,56	5 valeurs allant de 1,51 à 3,63	1,02	5,78
US EPA, 2005 (kg sec/m ²)	0,246	10,52 (1)	0,252	0,15 pour l'herbe 0,5 pour le foin	0,8
Valeur déterministe retenue (kg sec/m ²)	0,21	0,19	0,31	0,27	1,0
Distribution retenue (kg sec/m ²)	U (0,1 ; 0,5)	U (0,1 ; 0,3)	U (0,2 ; 0,5)	U (0,2 ; 0,3)	U (0,8 ; 1,4)

(1) : distribution établie par le GRNC à partir des données collectées

(2) : valeur « suspecte », sans précision de l'origine

2.2.2.2 DUREE DE CROISSANCE

Ce paramètre est utilisé pour estimer le dépôt de polluant particulaire sur les végétaux poussant au-dessus du sol et sans enveloppe de protection.

Dans les modèles utilisés pour cette étude, la durée considérée est la durée d'exposition des parties consommées des végétaux et non l'ensemble de la période végétative.

Les données issues de trois sources bibliographiques ont été confrontées : GCNC (2002), GRNC (2002), US EPA (2005). La deuxième référence rapporte notamment les durées de croissance fournies par le Larousse agricole (1991), Sunassee (1999), Soltner (1990) et Mazoyer *et al.* Les données de US DOe (2004), correspondant à des climats sensiblement différents de celui de la France, n'ont pas été retenues.

A partir de ces données des distributions triangulaires ont été définies pour les durées de croissance de chaque catégorie de végétaux exposés.

Pour le maïs ensilage, la distribution utilisée est la même que celle définie par le GRNC.

Pour les légumes-feuilles, la borne inférieure de la distribution définie par le GRNC a été augmentée passant de 30 jours à 45 jours, la valeur initiale paraissant faible, compte-tenu du climat relativement rigoureux du site.

Enfin, la même distribution a été attribuée aux légumes-fruits et aux fruits. Il convient de noter que la borne supérieure de la distribution (égale à 150 jours) est inférieure aux valeurs rapportées par le GRNC, puisque les valeurs présentées dans le document correspondent à l'ensemble de la période végétative et non à la durée d'exposition de la partie consommée.

Tableau 9 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour la durée de croissance

Référence	Légumes- feuilles	Légumes- fruits	Fruits	Fourrage	Ensilage
GCNC, 2002 (an)	0,11	0,49		0,12	0,18
GRNC, 2002 (an)	T (0,08 ; 0,33 ; 0,58)	de 0,14 à 0,5			T (0,36 ; 0,42 ; 0,49)
US EPA, 2005 (an)	0,16			0,08 pour l'herbe 0,16 pour le foin	0,16
Valeur déterministe retenue (an)	0,21	0,25	0,25	0,12	0,41
Distribution retenue (an)	T (0,12 ; 0,21 ; 0,58)	T (0,16 ; 0,25 ; 0,41)	T (0,16 ; 0,25 ; 0,41)	T (0,08 ; 0,12 ; 0,16)	T (0,36 ; 0,41 ; 0,49)

2.2.2.3 CONSTANCE DE DECROISSANCE

La concentration de polluant dans les végétaux résultant d'un dépôt foliaire peut diminuer au cours du temps par entraînement par le vent et la pluie, mais aussi et surtout, par effet de dilution lié à la croissance du végétal entre le moment du dépôt et celui de la consommation. Cette diminution de la concentration est représentée par un modèle de décroissance exponentielle du premier ordre, à l'aide d'une constante appelée constante de lessivage ou constante de décroissance biomécanique, selon les sources. Cette constante k est reliée à la demi-vie T par la relation suivante : $T = \ln(2) / k$.

Pour les légumes-feuilles et le fourrage, les distributions proposées par le GRNC, et basées sur des données expérimentales, ont été reprises.

Pour les légumes-fruits et les fruits, ce document ne donne pas de distribution. Dans la mesure où la croissance de ces végétaux est plus lente que celle des légumes-feuilles, la demi-vie maximale pour les légumes-fruits et les fruits a été supposée plus grande que celle associée aux légumes-feuilles. La distribution unique proposée dans la documentation relative au modèle radioécologique ERWYN (Environmental Radiation Model for Yucca Mountain Nevada) (US DOE, 2003 b, c) et basée sur une revue des valeurs proposées par différents auteurs a été retenue.

Cette distribution a également été attribuée à l'ensilage.

Tableau 10 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour la constante de décroissance

Référence	Légumes- feuilles	Légumes- fruits	Fruits	Fourrage	Ensilage
GCNC, 2002 (an ⁻¹)	18	18		18	18
GRNC, 2002 (an ⁻¹)	T (11 ; 26 ; 51)			T (5,5 ; 18 ; 37)	T (11 ; 26 ; 51)
US EPA, 2005 (an ⁻¹)	18			18	18
Valeur déterministe retenue (an ⁻¹)	18	18	18	18	18
Distribution retenue (an ⁻¹)	T (11 ; 26 ; 51)	T (8,4 ; 18; 51)	T (8,4 ; 18; 51)	T (5,5 ; 18 ;37)	T (8,4 ; 18; 51)

2.2.2.4 FRACTION INTERCEPTEE

Il s'agit de la fraction du dépôt atmosphérique qui est interceptée par les végétaux. Compte tenu des modèles utilisés, c'est la fraction interceptée par les parties consommables des végétaux qui doit être considérée. De plus, dans le cadre d'un dépôt continu, c'est la fraction moyenne interceptée sur la période de culture qui doit être considérée.

La valeur de ce paramètre est comprise entre 0 (quand le sol est nu) et 1 (valeur extrême jamais atteinte).

Les sources bibliographiques suivantes ont été consultées : GCNC (2002), US EPA (2005), GRNC (2002), Baes (1984). Toutefois, les données relatives aux cultures de légumes-fruits et de fruits présentées dans les études Nord-Cotentin n'ont pu être utilisées, car elles se rapportent à la biomasse végétale totale et non à la partie comestible des végétaux. Par ailleurs, toutes les valeurs présentées dans GCNC semblent correspondre aux fractions maximales interceptées durant le cycle de culture. Elles n'ont donc pas été retenues.

Les distributions arrêtées couvrent l'ensemble des valeurs restantes. Il s'agit de distributions triangulaires dont la valeur minimale est égale à la valeur trouvée la plus faible et la valeur maximale correspond à la valeur la plus forte. Quant au mode et à la valeur déterministe retenues, ils correspondent à la valeur calculée par les relations empiriques de Baes (1984) à partir des valeurs déterministes définies pour le rendement cultural et la teneur en matière sèche (cf. ci-dessous).

Tableau 11 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour la fraction interceptée

Référence	Légumes-feuilles	Légumes-fruits	Fruits	Fourrage	Ensilage
GCNC, 2002 (-)	0,5	0,5		0,9 (foin) 0,7 (herbe)	0,9
GRNC, 2002 (-)	T (0,2 ; 0,25 ; 0,3)			T (0,4; 0,5 ; 0,6)	T (0,4; 0,5 ; 0,6)
US EPA, 2005 (-)	0,215	0,996 (1)	0,053	0,5	0,46
Baes,1984 (-)	de 0,15 à 0,39	0,073	de 0,027 à 0,068		de 0,44 à 0,72
Valeur déterministe retenue (-)	0,20	0,15	0,10	0,55	0,55
Distribution retenue (-)	T (0,10 ; 0,20 ; 0,50)	T (0,03; 0,15; 0,15)	T (0,03; 0,10; 0,10)	T (0,40 ; 0,55 ; 0,60)	T (0,40 ; 0,55 ; 0,60)

(1) : valeur non prise en compte car établie à partir d'une valeur de rendement cultural suspecte

2.2.2.5 FRACTION DU DEPOT HUMIDE QUI ADHERE A LA SURFACE DES PLANTES

Dans les modèles INERIS et HHRAP, seule une fraction du dépôt humide interceptée par la partie consommable des plantes adhère effectivement à la plante. Pour ce paramètre, la valeur proposée dans L'US EPA (2005) propose une valeur de 0,6 pour les cations et les particules insolubles et une valeur de 0,2 pour les anions.

Le GCNC parle de rapports de captation sec (Rp) et humide (Rh). Le rapport de captation sec est équivalent à la fraction interceptée définie ci-dessus et le rapport de captation humide correspond au produit de la fraction interceptée par la fraction du dépôt humide qui adhère à la surface des plantes.

Or, le GCNC utilise une valeur égale à 0,1 pour Rh. Si on considère que la fraction interceptée par les plantes varie de 0,03 à 0,6 (cf. distributions affectées aux paramètres « fraction interceptée »), alors la fraction du dépôt humide qui adhère à la surface des plantes peut elle-même varier de 0,15 à 1.

Une distribution uniforme a été définie entre ces deux bornes. La valeur déterministe retenue est égale à la valeur proposée par l'US EPA (2005).

Tableau 12 : Valeur et distribution utilisées pour la fraction du dépôt humide qui adhère à la surface des plantes

Valeur déterministe (-)	0,6
Distribution statistique (-)	U (0,15 ; 1)

2.2.2.6 TENEUR EN MATIERE SECHE

L'utilisation de valeurs de rations alimentaires humaines exprimées en quantité de matière fraîche, alors que les concentrations dans les végétaux sont calculées en poids de matière sèche, nécessite de définir la teneur en matière sèche des

légumes-feuilles, des légumes-fruits, des fruits et des légumes-racines. En outre, la prise en compte de manière spécifique dans HHRAP d'une catégorie de végétaux protégés et poussant au dessus du sol conduit à définir une cinquième distribution représentative des fruits et légumes secs.

Les distributions ont été établies à partir des données issues de trois sources de données : Baes *et al.* (1984), US DOe (2004) et le site internet APRIFEL.

Des distributions triangulaires pour chacune des catégories de végétaux citées ci-dessus ont été établies à partir de l'ensemble des données collectées. Le mode et la valeur déterministe retenus correspondent à la moyenne.

Tableau 13 : Valeurs et distributions utilisées pour la teneur en matière sèche

Référence	Valeur déterministe retenue (-)	Distribution retenue (-)
Légumes-feuilles	0,07	T (0,05 ; 0,07 ; 0,12)
Légumes-fruits	0,07	T (0,04 ; 0,07 ; 0,10)
Fruits	0,15	T (0,10 ; 0,15 ; 0,18)
Légumes-racines	0,20	T (0,12 ; 0,20 ; 0,22)
Fruits et légumes secs	0,77	T (0,59 ; 0,77 ; 0,97)

2.2.2.7 TAUX D'IRRIGATION DES LEGUMES-FEUILLES

Compte-tenu du climat frais et humide sur la zone d'étude, il a été considéré que l'arrosage pouvait varier de 0 à 3 mm/j (3 mm d'eau par jour correspondent à l'utilisation de 30 litres d'eau par jour, soit environ 3 arrosoirs pour 10 m²).

Une distribution triangulaire a donc été définie avec pour valeur minimale 0 et pour valeur maximale 3 mm/j. Le mode et la valeur déterministe retenus correspondent à la moyenne des bornes inférieure et supérieure, soit 1,5 mm/j.

Tableau 14 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'irrigation

Valeur déterministe (mm/j)	1,5
Distribution statistique (mm/j)	T (0 ; 1,5 ; 3)

2.2.3 AUTRES PARAMETRES ENVIRONNEMENTAUX

2.2.3.1 VITESSE DE DEPOT DES PARTICULES REMISES EN SUSPENSION

Des vitesses de dépôt variant de 4 à 5 ordres de grandeur peuvent être trouvées dans la littérature (INERIS, 2003, US DOe, 2003).

La vitesse de dépôt des particules peut être estimée par des abaques, en fonction du diamètre des particules, de la vitesse de friction et de la densité des particules.

L'US DOe (2003 a, c) a défini une distribution cumulée à partir de ces abaques pour évaluer la vitesse de dépôt des particules sur des cultures.

Les conditions décrites dans cette étude pouvant s'appliquer au site de Bourg-Fidèle (distribution de la taille des particules définie par défaut, même masse

volumique de particules et même vitesse de friction), la distribution cumulée de l'US DOe a été reprise.

Tableau 15 : Valeur et distribution utilisées pour la vitesse de dépôt des particules remises en suspension

Valeur déterministe (m/s)	0,03
Distribution statistique (m/s)	CUM : perc 0 : $3 \cdot 10^{-4}$ perc. 16 : 10^{-3} perc. 50 : $8 \cdot 10^{-3}$ perc. 84 : $3 \cdot 10^{-2}$ perc. 100 : $3 \cdot 10^{-1}$

2.2.3.2 CONCENTRATION DE PARTICULES EN SUSPENSION DANS L'AIR

Dans la même étude, l'US DOe a défini une distribution pour la concentration de particules remise en suspension dans l'air à partir du sol, basée sur des données de particules totales en suspension (PST).

Cette distribution s'appuie sur des mesures effectuées en milieu rural, dans la partie ouest des Etats-Unis, dans un environnement sans activité perturbant le sol. Ces mesures n'ont pas été effectuées au niveau des végétaux mais à une hauteur de 1,5 m au-dessus du sol. Pour cette raison, l'US DOe a défini une distribution triangulaire où la valeur minimale correspond à la valeur la plus faible mesurée, où le mode et la borne supérieure ont été fixés en multipliant, de manière arbitraire, les concentrations modale et maximale mesurées.

Cette distribution s'appuie donc sur des connaissances médiocres. Mais, en l'absence de données disponibles mieux adaptées (aucune donnée de PST en milieu rural trouvée pour la France), la distribution de l'US DOe a été reprise ici.

Cette distribution, s'appuyant sur des mesures faites dans un environnement plus sec qu'à Bourg-Fidèle (donc sujet à une remise en suspension des particules à partir du sol plus importante), tend aussi à être plus majorante pour Bourg-Fidèle que pour le site de l'US DOe. Mais, cette distribution reste cohérente avec l'intervalle de valeurs fourni dans ECETOC (1992) pour des zones situées en dehors d'un environnement urbain (de 50 à $100 \mu\text{m}/\text{m}^3$). Par ailleurs, l'analyse de sensibilité effectuée par la suite montre que cette donnée d'entrée (et son caractère potentiellement majorant) a peu d'impact sur les résultats de la modélisation.

Tableau 16 : Valeur et distribution utilisées pour la concentration de particules remises en suspension

Valeur déterministe (kg/m^3)	$1,2 \cdot 10^{-7}$
Distribution statistique (kg/m^3)	T ($2,5 \cdot 10^{-8}$; $1,2 \cdot 10^{-7}$; $2,0 \cdot 10^{-7}$)

2.2.3.3 PLUVIOMETRIE

Une distribution triangulaire a été affectée à ce paramètre à partir de la pluviométrie enregistrée sur la période 2001-2002, à Rocroi. La valeur déterministe et la valeur modale de la distribution correspondent à la moyenne

mesurée sur cette période, les bornes inférieure et supérieure sont égales à +/- 10% de cette valeur.

Tableau 17 : Valeur et distribution utilisées pour la pluviométrie

Valeur déterministe (mm/an)	1294
Distribution statistique (mm/an)	T (1163 ; 1294 ; 1425)

2.2.3.4 EVAPOTRANSPIRATION

En l'absence de donnée, une simple distribution uniforme a été définie, en tenant compte de la pluviométrie élevée mesurée sur le site.

Un coefficient de corrélation de 0,5 a été défini, de manière arbitraire, entre la pluviométrie et l'évapotranspiration.

Tableau 18 : Valeur et distribution utilisées pour l'évapotranspiration

Valeur déterministe (mm/an)	800
Distribution statistique (mm/an)	U (600, 1000) (1)

(1) : distribution corrélée à celle de la pluviométrie par un facteur 0,5

2.3 PARAMETRES D'EXPOSITION

2.3.1 PARAMETRES RELATIFS AUX ANIMAUX

Comme indiqué dans l'annexe 3, les différents modèles multimédia étudiés ne prennent pas en compte les mêmes classes d'animaux et le même type d'alimentation pour ces animaux.

Comme pour les paramètres relatifs aux végétaux, les valeurs attribuées aux paramètres de CalTOX et HHRAP ont été renseignées en adaptant les valeurs et distributions décrites ci-dessous. Ainsi, dans CalTOX, où les bovins sont supposés ne consommer qu'une seule catégorie de végétaux, ce paramètre de consommation s'est vu attribué la somme des consommations de fourrage et d'ensilage définies pour le modèle INERIS (le modèle INERIS distinguant ces deux types d'apport alimentaire chez le bovin).

2.3.1.1 QUANTITES D'ALIMENTS CONSOMMES

Les distributions utilisées pour cette étude ont été définies en confrontant les données des rapports du GCNC (2002), du GRNC (2002), de l'IAEA (1994) et de l'US DOe (2003 c). Selon les sources, les quantités d'aliments sont données en masse fraîche ou en masse sèche.

Des distributions triangulaires ont été définies pour les quantités totales d'aliments consommées par chaque type d'animal.

Pour le bovin, une distribution uniforme représentant la part de fourrage dans son alimentation a été définie (la valeur déterministe retenue correspond à la moyenne des bornes inférieure et supérieure), le complément étant supposé être de l'ensilage.

Tableau 19 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour les consommations alimentaires des animaux

Référence	bovin	porc	volaille
GCNC, 2002 (kg frais/j)	herbe : 60 (8 mois/an) foin : 5 (4 mois/an) maïs : 35 (4 mois/an)	maïs ensilage : 2,5	maïs ensilage : 0,06
US DOe, 2003 (kg frais/j)	29 à 73 (1)		0,12 à 0,4 (2)
US EPA, 2005 (kg sec/j)	fourrage : 8,8 / 13,2 (3) ensilage : 2,5 / 4,1 céréales : 0,47 / 3	ensilage : 1,4 céréales : 3,3	céréales : 0,2
IAEA, 1994 (kg sec/j)	10 à 25	2 à 3	0,05 à 0,15
GRNC, 2002 (kg frais/j)	herbe : T (0 ; 70 ; 70) foin : T (0 ; 70 ; 70) maïs : T (0 ; 40 ; 40) (4)		
Valeurs déterministes retenues (kg sec/j)	quantité totale d'aliment : 16,1 (5) fraction de fourrage dans l'alimentation : 0,72	2,5	0,1
Distribution (kg sec/j)	quantité totale d'aliment T (9 ; 16,1 ; 25) fraction de fourrage dans l'alimentation : U (0,65 ; 0,79)	T (2 ; 2,5 ; 4,7) (6)	T (0,05 ; 0,10 ; 0,15)

- (1) : les valeurs les plus faibles correspondent aux consommations du bœuf, les valeurs les plus fortes aux consommations de la vache laitière,
- (2) : le type d'aliments auquel se réfère ces valeurs (et donc leur teneur en matière sèche) n'étant pas connu, ces valeurs ne sont pas prises en compte,
- (3) : la première valeur correspond à la consommation du bœuf, la seconde à celle de la vache laitière,
- (4) : contrainte sur la somme des trois quantités qui ne doit pas dépasser 70 kg/j,
- (5) : valeur recommandée par IAEA (1994),
- (6) : la valeur maximale correspond à la consommation d'une truie.

2.3.1.2 QUANTITE DE SOL INGERE

Les distributions utilisées pour cette étude ont été définies en confrontant les données utilisées dans les rapports du GCNC (2002), du GRNC (2002), de l'IAEA (1994) et de l'US DOe (2003 c).

Pour les bovins et la volaille, les données retenues correspondent à une quantité de sol ingéré (distribution triangulaire pour les bovins, distribution uniforme pour la volaille compte-tenu de données plus limitées). Pour le porc, compte-tenu des données disponibles, la quantité de sol ingéré est définie comme un pourcentage de la masse d'aliments consommés par jour. La distribution retenue est de type uniforme.

Tableau 20 : Données collectées, valeurs et distributions utilisées pour les quantités de sol ingéré par les animaux

Référence	bovin	porc	volaille
GCNC, 2002 (kg/j)	0,7	0	0,01
GRNC, 2002 (kg/j)	T (0,1 ; 0,5 ; 0,5)		
US EPA, 2005 (kg/j)	0,5 / 0,4 (1)	0,37	0,02
US DOe, 2003 (%)	6 % du poids sec des aliments consommés		10 % du poids sec des aliments consommés
IAEA, 1994 (%)	4 à 8 % du poids sec d'herbe consommés	1,5% du poids sec des aliments consommés (si aliments confinés)	
Valeur déterministe retenue	0,5 kg/j	1,5% du poids secs des aliments consommés	0,02 kg/j
Distribution retenue	T (0,4 ; 0,5 ; 1,1) (en kg/j)	U (0 ; 1,5) en % du poids sec des aliments consommés	U (0,01 ; 0,03) (en kg/j)

(1) : la première valeur correspond au bœuf, la seconde à celle de la vache laitière.

2.3.2 PARAMETRES RELATIFS AUX ENFANTS

2.3.2.1 CONSOMMATIONS ALIMENTAIRES

L'étude Alliance 7-SOFRES-CHU/Dijon (Boggio *et al.*, 1999) donne les consommations alimentaires des enfants âgés de 15 jours à 18 mois et l'enquête INCA (Volatier, 2000) rapporte les consommations alimentaires moyennes des individus âgés de plus de 3 ans (par intervalle de 3 ans chez les enfants). A partir de ces données, il a été possible sur la période d'intérêt allant de 0 à 7 ans de distinguer les consommations alimentaires pour 7 classes d'âge :

- les enfants de 0 à 4 mois,
- les enfants de 4 à 6 mois,
- les enfants de 6 mois à 1 an,
- les enfants de 1 an à 1,5 an,
- les enfants de 1,5 an à 3 ans,
- les enfants de 3 à 6 ans,
- les enfants de 6 à 9 ans.

Définitions des valeurs déterministes

Les consommations alimentaires moyennes des deux enquêtes ci-dessous ont servi à fixer les valeurs déterministes par classe d'âge et d'aliments.

Les quantités d'aliments consommées par chaque classe d'âge ont été calculées à partir des types d'aliments reportés dans chacune de ces études.

Pour les enfants de 0 à 18 mois et à partir de l'étude Alliance-SOFRES-CHU/Dijon 1997,

- la catégorie « légumes-racines » a été définie en additionnant les consommations de pommes de terre, de carottes, de betteraves, de salsifis, de céleris, de navets, d'oignons, d'échalotes et de champignons ;
- la catégorie « légumes-feuilles » a été définie en additionnant les consommations de choux-fleurs, de brocolis, de choux rouges, de choux-feuilles, de choux de Bruxelles, de laitues, d'épinards, de bettes, d'endives, d'haricots verts, de poireaux, de fenouils, de persil et d'artichauts ;
- la catégorie « légumes-fruits » a été définie à partir des consommations de citrouilles, d'aubergines, de poivrons, de tomates, de concombres, de courgettes, de petits pois, de lentilles, de haricots blancs et de petits pois secs ;
- la catégorie « fruits » a été définie à partir des consommations d'amandes, de noix, de poires, de pommes, de pêches, de cerises, de pruneaux, d'abricots, de raisin, de fraises, de framboises et de figues ;
- les quantités de viande de volaille définie dans l'étude ont été reportées telles quelles dans les modèles ;
- la quantité de viande porcine (viande + charcuterie) a été supposée égale à 40 % de la somme des différentes viandes consommées (hors viande de volaille), 40 % correspondant à la part moyenne de viande de porc et de charcuterie consommée d'après les trois études référencées (Dufour, 2000 ; Preziosi, 1991, Volatier, 2000) par le GRNC (2002) ;
- la quantité de viande bovine consommée a été définie comme la quantité de viande restante ;
- le paramètre « quantité de lait ingéré » a été renseigné par la rubrique regroupant le lait non sucré, le lait sucré, le beurre et le fromage ;
- la rubrique œufs avec ou sans coquille a permis de renseigner le paramètre « quantité d'œufs ingérée » des modèles.

Pour l'ensemble de ces consommations, les quantités d'aliments infantiles (c'est-à-dire spécialement destinés aux nourrissons et aux enfants en bas âge) n'ont pas été intégrées.

Pour les enfants de plus de trois ans et à partir de l'étude INCA,

- les quantités de légumes-feuilles, de légumes-fruits et de légumes-racines consommées ont été calculées grâce à la quantité totale de légumes fournie et des pourcentages de chacun de ces trois types de légumes dans la consommation globale de légumes. Ces pourcentages ont, eux, été calculés à partir des données de l'étude INSEE de 1991, donnant les consommations d'un individu moyen par type de légumes ;
- les rubriques « fruits » et « compotes et fruits cuits » ont été additionnées pour définir la quantité de fruits consommés ;
- la catégorie « volaille et gibiers » a servi à définir la quantité de viande de volaille consommée ;

- la quantité de viande porcine a été calculée en additionnant 30% de la quantité présentée sous la rubrique « viande » à la charcuterie consommée. Cette valeur de 30 %, appliquée par le GRNC (2002), est issue de l'étude INSEE ;
- la quantité de viande bovine consommée correspond à la part de viande restante ;
- les rubriques correspondant aux consommations de lait, d'ultra-frais laitier, de fromages et de beurre ont été additionnées et assimilées à la quantité de lait de vache ingérée ;
- la rubrique « œufs et dérivés » a servi à renseigner le paramètre « quantité d'œufs ingérée » ;

Les différentes catégories ci-dessus correspondent à celles du modèle INERIS. Pour les 3 autres modèles, des regroupements ont été réalisés en fonction des catégories de végétaux et d'animaux considérés dans chaque modèle. Par exemple, le modèle HHRAP prend en compte deux catégories d'aliments d'origine végétale, consommés par l'homme, et qui poussent au-dessus du sol : ceux qui sont protégés et ceux qui sont exposés. Pour les premiers, il a fallu sommer les consommations de pois, haricots en grains, lentilles, amandes, noix et noisettes (enfants de 0 à 18 mois) ou bien calculer les consommations de légumes secs et de fruits secs (enfants de plus de 3 ans) à partir du pourcentage de ces aliments dans la consommation de fruits et légumes des individus. Quant aux consommations de fruits et légumes exposés, elles ont été estimées par la différence entre les quantités totales de fruits et légumes consommés, poussant au-dessus du sol, et celles définies précédemment.

Enfin, compte-tenu du manque de recoupement entre les populations étudiées dans les deux enquêtes, les consommations alimentaires des enfants de 1,5-3 ans ont été définies en faisant la moyenne des consommations alimentaires des 1-1,5 ans et des 3-5 ans.

Tableau 21 : Valeurs déterministes utilisées pour les quantités d'aliments consommés par les enfants des différentes classes d'âge

	0-4 mois	4-6 mois	6-12 mois	12-18 mois	18-36 mois	3-6ans	6-9ans
lég-feuilles (kg/j)	$3,1.10^{-4}$	$3,8.10^{-3}$	$1,3.10^{-2}$	$2,6.10^{-2}$	$2,5.10^{-2}$	$2,5.10^{-2}$	$3,1.10^{-2}$
lég-fruits (kg/j)	$3,0.10^{-4}$	$8,9.10^{-3}$	$2,0.10^{-2}$	$3,3.10^{-2}$	$2,6.10^{-2}$	$1,9.10^{-2}$	$2,4.10^{-2}$
lég-racines (kg/j)	$6,4.10^{-4}$	$1,6.10^{-2}$	$6,3.10^{-2}$	$8,7.10^{-2}$	$7,3.10^{-2}$	$5,9.10^{-2}$	$7,4.10^{-2}$
fruits (kg/j)	$1,0.10^{-3}$	$1,1.10^{-2}$	$3,1.10^{-2}$	$4,1.10^{-2}$	$6,2.10^{-2}$	$8,2.10^{-2}$	$1,0.10^{-1}$
œuf (kg/j)	$8,0.10^{-5}$	$5,7.10^{-4}$	$3,9.10^{-3}$	$1,0.10^{-2}$	$1,0.10^{-2}$	$9,4.10^{-3}$	$1,2.10^{-2}$
volaille (kg/j)	0	$1,1.10^{-3}$	$5,0.10^{-3}$	$8,9.10^{-3}$	$1,3.10^{-2}$	$1,8.10^{-2}$	$2,4.10^{-2}$
bœuf (kg/j)	$1,6.10^{-4}$	$2,2.10^{-3}$	$1,2.10^{-2}$	$3,1.10^{-2}$	$2,8.10^{-2}$	$2,4.10^{-2}$	$2,9.10^{-2}$
porc (kg/j)	0	$1,4.10^{-3}$	$7,9.10^{-3}$	$2,1.10^{-2}$	$2,7.10^{-2}$	$3,4.10^{-2}$	$4,0.10^{-2}$
produits laitiers (kg/j)	$2,6.10^{-3}$	$1,0.10^{-1}$	$2,3.10^{-1}$	$4,2.10^{-1}$	$3,9.10^{-1}$	$3,6.10^{-1}$	$3,5.10^{-1}$

Définition des distributions statistiques

La définition de distributions statistiques à partir des seules données de consommations moyennes pose problème.

Pour définir les distributions statistiques pour les différentes catégories d'aliments, il faudrait disposer des données brutes des enquêtes, afin de prendre en compte les corrélations entre les différentes catégories d'aliments (les gros consommateurs d'une catégorie d'aliments pendant la période limitée de l'étude étant vraisemblablement de plus petits consommateurs pour une autre catégorie). Toutefois, même en utilisant les données brutes, obtenues sur une courte période, il y a un risque de surestimation de la variabilité individuelle des quantités consommées pour une période d'exposition longue, comme celle qui nous intéresse.

Faute de données adéquates, deux approches ont été testées :

1. des distributions triangulaires ont été définies pour chaque catégorie d'aliments en prenant comme :
 - valeur modale, la valeur déterministe,
 - valeur minimale, la valeur modale divisée par 2,
 - valeur maximale, la valeur modale multipliée par 2.

Cette approche, utilisée par le GRNC pour définir l'incertitude sur les consommations alimentaires d'un individu moyen, est ici utilisée pour représenter l'incertitude et la variabilité des consommations alimentaires dans chaque classe d'âge. La consommation de chaque catégorie d'aliment pour une classe d'âge donnée est supposée corrélée au poids corporel de cette classe d'âge avec un coefficient de 0,8 (les plus gros mangeurs étant supposés avoir une masse corporelle plus élevée) et à la consommation de cette catégorie d'aliments par les individus de la classe d'âge immédiatement inférieure et immédiatement supérieure avec un coefficient de 0,8 (l'idée étant que pour un même individu, il existe une continuité dans son mode d'alimentation, un petit consommateur d'une catégorie de produits ne devenant pas subitement un gros consommateur de ces produits);

2. des distributions lognormales ont été définies pour chaque type d'aliments et chaque classe d'âge avec une moyenne égale à la quantité consommée ramenée au poids corporel et un écart-type égal à 20 % de la moyenne (telle que proposé par McKone, 1994). Là encore, les quantités consommées par une classe d'âge sont corrélées par un coefficient 0,8 aux consommations des classes d'âge immédiatement inférieure et supérieure.

2.3.2.2 MASSE CORPORELLE

Afin de pouvoir calculer les quotients de danger, il a été nécessaire de définir les masses corporelles relatives à chacune des classes d'âge présentées ci-dessus.

Ces masses ont été déterminées à partir des distributions observées en France par le Ministère de la Santé (carnet de santé). A l'âge médian de chaque classe d'âge, les masses corporelles ont été relevées à partir des courbes reproduites dans le carnet de santé. Une distribution lognormale a été ajustée à ces données. Pour éviter le tirage au sort de masses corporelles irréalistes, ces distributions ont

été bornées. Quant à la valeur déterministe, elle a été définie comme le poids moyen de la courbe de distribution empirique des poids.

La distribution des masses corporelles d'une classe d'âge est corrélée à la fois à la distribution se rapportant à la classe d'âge immédiatement supérieure et à la distribution de la classe d'âge immédiatement inférieure.

Tableau 22 : Valeurs et distributions utilisées pour les masses corporelles des enfants

Classes d'âge	valeur déterministe (kg)	distribution statistique (kg)
0-4 mois	4,8	LN (4,8 ; 0,8; 2,0 ; 8,0)
4-6 mois	6,9	LN (6,1 ; 0,9; 5,0 ; 9,2)
6-12 mois	8,6	LN (8,6; 1,2; 5,6 ; 11,8)
12-18 mois	10,6	LN (10,1 ; 1,5; 7,3 ; 13,5)
18-36 mois	12,4	LN (12,2 ; 1,8; 8,4 ; 17,1)
3-6ans	15,6	LN (15,4 ; 2,3; 11,0 ; 22,0)
6-9ans	21,7	LN (21,2 ; 3,2; 13,5 ; 28,5)

La borne inférieure de chaque distribution correspond au 3^{ème} percentile de la courbe des distributions des masses corporelles pour un âge égal à la borne inférieure de chaque classe (exemple : le 3^{ème} percentile de la courbe de distribution des poids des enfants de 4 mois est égal à 5 kg) ;

La borne supérieure de chaque distribution correspond au 97^{ème} percentile de la courbe des distributions des masses corporelles pour un âge égal à la borne supérieure de chaque classe (exemple : le 97^{ème} percentile de la courbe de distribution des poids des enfants de 6 mois est égal à 9,2 kg).

2.3.2.3 INGESTION DE SOL

Enfants de 4 mois à 4 ans

La valeur déterministe utilisée dans la présente étude, pour les enfants de 4 mois à 4 ans, est dans l'ordre de grandeur de celles classiquement utilisées dans les évaluations de risques. Il s'agit de celle qui était utilisée, notamment dans le cadre du scénario dit « sensible » pour la définition des valeurs de constat d'impact lié au sols pollués (INERIS a, 2001), à savoir 150 mg/jour.

Par ailleurs, il convient de noter que l'US EPA a comparé et calé son modèle IEUBK (US EPA, 1994 a) à des données de mesures sur site avec une valeur d'ingestion de sol égale à 135 mg par jour, pour les des enfants de 1 à 4 ans.

Une analyse des publications disponibles sur la quantité de sol par un enfant a été réalisée par Jacquet (2007). Ce travail montre bien qu'il n'existe aucune donnée réellement satisfaisante pour estimer la quantité de sol ingéré par un enfant sur le long terme. Ainsi, les études basées sur les quantités de traceurs recueillies dans les fèces des enfants et la concentration de ces traceurs dans les sols présentent de nombreuses limites : prise en compte ou non des autres sources d'exposition aux traceurs que le sol, variabilité élevée des résultats selon les traceurs, durée des études limitée à quelques jours, temps de transit non connu et variable selon les individus). Aussi, plusieurs distributions d'ingestion de sol ont été testées.

Malgré ses limites, la première distribution retenue dans notre étude, pour les enfants de 4 mois à 4 ans, est celle de Thompson *et al.* (1991). Elle est basée sur

les données collectées par Binder (1986) pendant trois jours consécutifs, sur 59 enfants âgés de 1 à 3 ans. Dans cette étude, l'apport de traceurs par l'alimentation n'a pas été déduit des quantités trouvées dans les fèces, mais la distribution finalement proposée par Thompson *et al.* repose sur la moyenne des valeurs obtenues à partir de l'aluminium et du silicium, alors que les données obtenues à partir du titane, qui s'avère être présent en quantité importante dans l'alimentation ont été écartées. La publication de Thompson *et al.* a l'avantage de fournir les distributions cumulées et ces distributions sont ajustées à l'ensemble des données mesurées et pas seulement à quelques percentiles de ces distributions.

Des travaux sur l'ingestion de sol par les jeunes enfants ont été également réalisés par Stanek et Calabrese, qui ont publié de nombreux articles proposant différents traitements statistiques des données qu'ils avaient collectées à partir de deux études, sur des enfants de 1 à 4 ans d'une part (étude D'Amherst) et de 1 à 3 ans d'autre part (étude d'Anaconda) (Calabrese *et al.*, 1995, 1997, Stanek *et al.*, 1995, 2000 ; 2001 a, b). Ces travaux, bien qu'ils soient de bonne qualité (prise en compte de plusieurs traceurs et recherche statistique des plus fiables, prise en compte des apports par l'alimentation, validation par une étude chez l'adulte) témoignent d'incertitudes importantes liées au temps de transit intestinal puisque des quantités de sol ingérées, moyennées sur sept jours apparaissent négatives pour une partie des enfants testés. Il faut souligner en outre la variabilité des résultats entre les études. Les estimations de quantités de sol ingéré fournies à partir de l'étude d'Anaconda sont plus faibles que celles calculées à partir de l'étude d'Amherst : les médianes des quantités moyennes de sol ingérés sur la durée de l'étude sont égales à 17 mg/j dans la première et à 45 mg/j dans la seconde étude. Quant aux moyennes de ces quantités, elles sont respectivement égales à 31 et 179 mg/j, la distribution des données obtenues sur Amherst s'étirant beaucoup vers la droite.

Dans leur publication de 2001 (2001 a), Stanek *et al.* ont retravaillé les données de l'étude sur les enfants d'Anaconda, en cherchant à distinguer, dans les mesures, d'une part la variabilité de l'incertitude et d'autre part la variabilité temporelle de la variabilité interindividuelle. Pour cela, ils ont construit un modèle mixte à effets aléatoires tenant compte des effets « enfant », « jour » et « traceur ». La résolution du système par une méthode d'ajustement permet de prédire l'effet « jour » et l'effet « enfant » de manière indépendante et d'obtenir 64 quantités de sol ingéré, représentatives de la distribution de ces données dans une population d'enfants. Les valeurs prédites pour l'effet « enfant » ne sont plus liées à la durée de l'expérimentation et peuvent alors être considérées comme représentative d'une exposition longue durée.

Les valeurs mesurées chaque jour, chez chaque enfant à partir des sept traceurs sont utilisés pour définir des distributions normales basées sur la médiane et l'écart-type de la médiane de ces valeurs. L'intégration de cette variable aléatoire dans le modèle mixte et la réalisation de 10 simulations successives permettent d'obtenir, après résolution du système, 10 réplicats de la distribution des quantités de sol ingérés dans une population d'enfants. Pour chaque percentile, les moyennes et les écarts-types sont alors calculés à partir de ces 10 réplicats. Ces moyennes représentent la distribution prédite des quantités de sol ingéré dans une population d'enfants, indépendamment de la durée de l'exposition. Quant aux écart-types, ils correspondent à l'incertitude entourant chaque percentile de la distribution, du fait de la méthode de mesure.

Ce traitement mathématique des données permettant d'interpréter des quantités de sol ingérées issues d'expérimentations de courte durée comme des données représentatives d'expositions chroniques est intéressant et en toute logique, la distribution ainsi obtenue présente une moins grande dispersion que celle obtenue à partir du simple calcul des quantités moyennes de sol ingérées sur sept jours par chaque enfant (Stanek *et al.*, 2000). En l'état, cette distribution n'est toutefois pas utilisable dans le travail de recherche présent, car :

- son utilisation directe impliquerait la prise en compte des 64 distributions de percentiles fournies et la réalisation de simulation Monte-Carlo 2 D. Or, de tels calculs, avec la macro de calcul des plombémies, s'avèreraient très lourds alors qu'ils n'apporteraient pas d'information supplémentaire à la problématique soulevée, qui vise à connaître l'étendue possible des quotients de dangers et des plombémies ;
- jusqu'au septième percentile, les valeurs de sol ingérées fournies par Stanek *et al.* sont négatives. Si on comprend que sur une courte période des quantités de sol négatives peuvent être calculées, compte tenu du protocole d'étude (soustraction de la quantité de traceurs ingérés de la quantité recueillie dans les fèces et décalage temporelle entre l'ingestion et l'excrétion), l'utilisation de telles données pour estimer des expositions n'a pas de sens.

Une distribution intégrant l'incertitude de mesures et la variabilité interindividuelle a donc été recalculée à partir de l'ensemble des éléments fournis par Stanek *et al.* (moyenne et écart-type de chaque percentile). Une borne inférieure égale à 0 a ensuite affectée à cette distribution pour éviter la prise en compte de quantités de sol ingéré négatives.

Pour cela, 1000 tirages au sort ont d'abord été effectués sur chacune des distributions normales des 64 percentiles définis dans la publication. 10000 valeurs d'ingestion de sol ont alors été tirées au sort dans les 64000 valeurs disponibles, selon un tirage au sort à deux niveaux avec remise. Le premier tirage au sort a d'abord porté sur le percentile de la distribution, et le second sur l'une des 1000 valeurs disponibles pour ce percentile. Une distribution cumulée a été reconstruite à partir des 10000 valeurs obtenues (cf. Figure 1). Cette distribution reste proche de celle de Stanek *et al.* (pour la distribution de Stanek, les percentiles 51, 95 et 99 sont égaux à 25, 91 et 137 tandis que ceux recalculés ici valent respectivement 22, 90 et 137 mg/j).

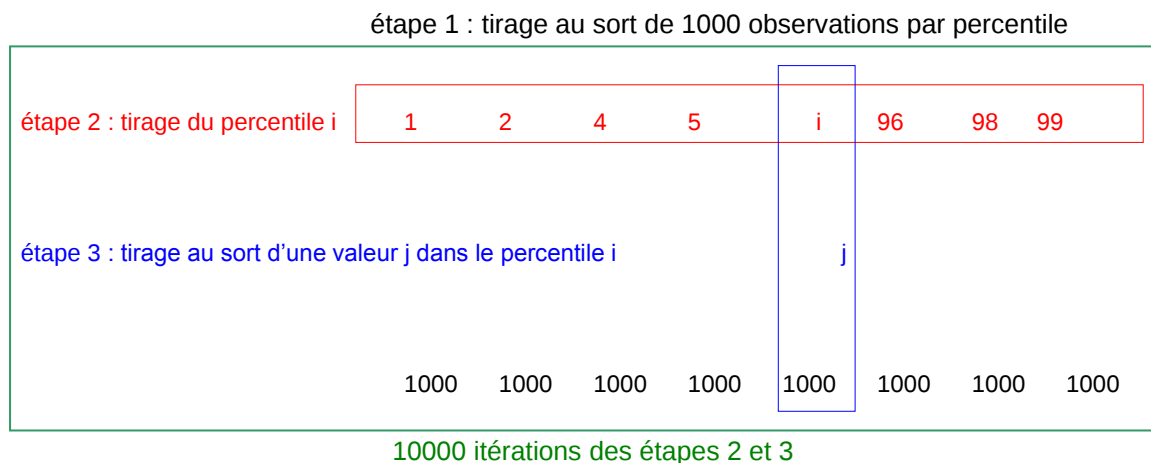


Figure 1 : Principe de construction de la distribution pour la quantité de sol ingéré

Un essai de calcul a donc été réalisé à partir de la nouvelle distribution intégrant incertitude et variabilité interindividuelle pour comparer les niveaux d'exposition ainsi calculés à ceux estimés avec la distribution de Thompson *et al.* (cf. annexe 6).

Pondération des quantités de sol ingéré pour les autres classes d'âge

Pour les enfants de moins de 4 mois, la quantité de sol ingéré est supposée nulle.

Pour les enfants de plus de 4 ans, un facteur de pondération est appliqué à la quantité de sol ingéré telle que définie ci-dessus. En effet, au-delà de 4 ans, le port des mains et des objets à la bouche tend à diminuer. Cette observation a conduit les auteurs des modèles IEUBK et ISE à fournir par défaut des quantités de sol ingéré par les enfants de plus de 4 ans plus faibles que pour les enfants plus jeunes. De 4 à 5 ans, un facteur d'atténuation de 0,74 est appliqué. De 5 à 6 ans, il est de 0,67 et de 5 à 7 ans, il est de 0,63. Le même facteur de pondération a été appliqué à ces tranches d'âge, dans la présente étude. En revanche et contrairement à ces modèles, aucun facteur d'atténuation n'a été appliqué pour les enfants compris entre 4 et 12 mois. Compte-tenu de l'âge des enfants pris en compte dans les calculs, ceci n'a qu'un impact très limité sur les résultats.

Enfin, il convient de noter que IEUBK distingue les quantités de sol et de poussières ingérés par les enfants en estimant une concentration de plomb différente entre ces deux matrices. Compte-tenu des données disponibles sur les poussières, ces deux quantités ont été confondues en une quantité de sol unique dans la présente étude.

Tableau 23 : Valeurs et distributions utilisées pour les quantités de sol ingéré par les enfants

Valeur déterministe (mg/j)	150
Distribution statistique (mg/j)	1) LN (85,6 ; 81,1) 2) CUM : perc. 15 : 0 perc 60 : 26 perc. 20 : 4 perc 65 : 29 perc. 25 : 7 perc 70 : 32 perc. 30 : 10 perc 75 : 36 perc. 35 : 14 perc 80 : 44 perc 40 : 17 perc 85 : 57 perc 45 : 19 perc 90 : 71 perc 50 : 22 perc 95 : 90 perc 55 : 24

Tableau 24 : Facteur de pondération utilisé en fonction de l'âge

	0-4 mois	0,5 - 4 ans	4 - 5 ans	5 - 6 ans	6-7 ans
Facteur de pondération	0	1	0,74	0,67	0,63

2.3.2.4 TAUX D'AUTOCONSOMMATION

Pour estimer les risques liés à la contamination générée par l'usine, seules les quantités d'aliments produites sur le site d'étude doivent être prises en compte. Classiquement et compte-tenu des données disponibles, les pourcentages d'aliments consommés et exposés à la contamination sont assimilés au pourcentage d'aliments produits directement par le consommateur.

Les taux d'autoconsommation sont calculés à partir des données INSEE (1991). Ils correspondent à la différence entre les consommations totales d'aliments par personne et les consommations données hors autoconsommation.

Comme dans les évaluations de risques prenant en compte les consommations de produits d'origines végétale et animale, les valeurs déterministes attribuées aux taux d'autoconsommation dans cette étude se réfèrent au cas d'une population agricole.

Pour les estimations probabilistes, des distributions triangulaires ont été attribuées à ces paramètres avec :

- valeur minimale : taux d'autoconsommation calculés à partir des données caractérisant une population non agricole habitant une commune rurale,
- valeur modale : taux d'autoconsommation calculés à partir des données caractérisant une population agricole habitant une commune rurale,
- valeur maximale : 1 (autoconsommation totale pour les produits frais).

Tableau 25 : Valeurs et distributions utilisées pour les taux d'autoconsommation

Catégories	valeur déterministe (-)	distribution statistique (-)
légumes	0,72	T (0,43; 0,72; 1)
fruits	0,29	T (0,17; 0,20; 1)
bœuf	0,34	T (0,02 ; 0,34; 1)
volaille	0,75	T (0,26; 0,70; 1)
porc	0,29	T (0,04; 0,20; 1)
œuf	0,26	T (0,26; 0,60; 1)
produits laitiers	0,35	T (0,06; 0,35; 1)

2.3.2.5 NOMBRE DE JOURS D'EXPOSITION

Il s'agit du nombre de jours par an où l'individu est présent sur le site. Il sert à calculer la fréquence d'exposition à la contamination du site, par inhalation et par ingestion de sol.

Pour rappel, les jours où les individus ne sont pas exposés à la contamination générée par le site, les concentrations ubiquitaires fixées pour le sol et pour l'air sont prises en compte (cf. paragraphes 2.1.2 et 2.1.3).

Une distribution triangulaire a été définie pour ce paramètre avec pour :

- valeur minimale : 325 jours (soit 40 jours hors du site, pouvant correspondre à 4 semaines de congés, plus un jour d'absence par mois),
- valeur modale : 350 jours (soit 15 jours hors du site, pouvant correspondre à 2 semaines de congés),
- valeur maximale : 365 jours (soit une présence constante sur le site).

Tableau 26 : Valeur et distribution utilisées pour le nombre de jours d'exposition

Valeur déterministe	365 jours/an
Distribution statistique	T (325 ; 350 ; 365)

2.3.2.6 AUTRES PARAMETRES D'EXPOSITION RELATIFS AUX ENFANTS

Exposition ubiquitaire par l'alimentation

L'estimation du niveau de plombémie nécessite de considérer toutes les sources et modes d'exposition au plomb, y compris l'exposition liée à la présence de la substance de manière ubiquitaire dans les milieux d'exposition.

L'apport de plomb par les aliments en dehors de la part attribuable spécifiquement aux retombées de l'usine Métal-Blanc sur ce site doit être défini.

Pour cela, les résultats de Glorennec (2006) ont été retenus. A partir des consommations alimentaires des enquêtes Alliance7-Sofres et INCA et des données de contamination issues de l'étude de l'alimentation totale française (INRA, AFSSA, 2004), l'auteur a obtenu, par une approche probabiliste, une distribution de la dose d'exposition au plomb des enfants âgés de 0,5 à 3 ans et

de 3 à 6 ans. Ces distributions ont été réutilisées et les valeurs déterministes correspondent à la moyenne calculée à partir de chaque distribution.

Quantité d'eau consommée

Les distributions utilisées sont issues de Glorennec (2006). Les valeurs déterministes utilisées correspondent à la moyenne de chaque distribution.

Tableau 27 : Valeurs et distributions utilisées pour les niveaux d'exposition ubiquitaires et la consommation d'eau journalière

	Niveau d'exposition ubiquitaire par l'alimentation (mg/kg pc/j)		Consommation d'eau journalière (l/kg pc/j)	
	0-3 ans	3-6 ans	0-3 ans	3-6 ans
valeur déterministe	$9,6.10^{-4}$	$5,8.10^{-4}$	$2,5.10^{-2}$	$1,4.10^{-2}$
distribution statistique	CUM: Perc. 0 : $4,3.10^{-4}$ Perc. 5 : $5,6.10^{-4}$ Perc. 25 : $7,6.10^{-4}$ Perc. 50 : $9,0.10^{-4}$ Perc. 75 : $1,1.10^{-3}$ Perc. 95 : $1,4.10^{-3}$ Perc. 100 : $2,3.10^{-3}$	CUM: Perc. 0 : $1,6.10^{-4}$ Perc. 5 : $2,7.10^{-4}$ Perc. 25 : $4,1.10^{-4}$ Perc. 50 : $5,6.10^{-4}$ Perc. 75 : $6,9.10^{-4}$ Perc. 95 : $9,3.10^{-4}$ Perc. 100 : $1,5.10^{-3}$	CUM: Perc. 0 : 0 perc. 50 : 0 Perc. 75 : $1,6.10^{-2}$ Perc. 95 : $4,7.10^{-2}$ Perc. 100 : $1,1.10^{-1}$	CUM: Perc. 0 : 0 Perc. 5 : $1,4.10^{-5}$ Perc. 25 : $1,1.10^{-3}$ Perc. 50 : $8,1.10^{-3}$ Perc. 75 : $2,1.10^{-2}$ Perc. 95 : $3,9.10^{-2}$ Perc. 100 : $7,2.10^{-2}$

Taux d'inhalation

Les distributions utilisées sont celles proposées dans ISE. Il s'agit de distributions normales définies pour des classes d'âge allant de 0 à 7 ans par pas de temps de 1 an. Pour éviter le tirage au sort de valeurs irréalistes, ces distributions ont été bornées : une valeur égale au percentile 1 de la distribution proposée par ISE a été utilisée comme borne inférieure, une valeur égale au percentile 99 de cette même distribution a été utilisée comme borne supérieure.

Les valeurs déterministes utilisées correspondent à la moyenne de chaque distribution.

Tableau 28 : Valeurs et distributions utilisées pour les taux d'inhalation

Classes d'âge	valeur déterministe (m^3/j)	distribution statistique (m^3/j)
0 - 1 an	2,0	LN (2,0; 1,2; 0,41 ; 7,1)
1 – 2 ans	3,0	LN (3,0; 1,4; 0,86; 8,6)
2 – 3 ans	5,0	LN (5,0; 2,4; 1,4; 14,7)
3 – 4 ans	5,0	LN (5,0; 2,4; 1,4 ; 14,7)
4 – 5 ans	5,0	LN (5,0; 2,4; 1,4 ; 14,7)
5 - 6 ans	7,0	LN (7,0; 3,4; 1,9 ; 20,5)
6 – 7 ans	7,0	LN (7,0; 3,4; 1,9 ; 20,5)

Plombémie de la mère à la naissance

Dans IEUBK et ISE, une valeur de 25 µg/l de sang a été fixée.

Dans une étude de l'Institut National de Santé Publique du Québec (2004), la plombémie au moment de l'accouchement d'une mère ayant subi une exposition professionnelle est comparée à celles de 900 autres femmes non exposées au plomb. La première présente une plombémie de 330 µg/l tandis que la plombémie des autres va de 20 à 290 µg/l.

En l'absence de données spécifiques, une distribution uniforme allant de 25 à 290 µg/l a été définie. Les simulations réalisées par la suite ont montré que la valeur de ce paramètre n'avait aucun impact sur les résultats de plombémie des enfants.

Tableau 29 : Valeur et distribution utilisées pour la plombémie de la mère

	Plombémie de la mère à la naissance (µg/l)
valeur déterministe	25
distribution statistique	U (25 ; 290)

2.4 PARAMETRES DE TRANSFERT DU PLOMB DANS L'ENVIRONNEMENT

Les modèles multimédia utilisés reposent sur l'emploi de coefficients de transfert ou de partage (encore appelés coefficients de biotransfert, facteurs de bioconcentration ou de bioaccumulation, selon les cas) qui permettent à partir de la concentration dans un milieu amont de calculer la concentration dans le milieu aval. Par exemple, la multiplication du coefficient de transfert d'un polluant vers le lait par la quantité de polluant ingéré par la vache permet d'estimer la concentration de ce polluant dans le lait.

Une définition soignée des valeurs de ces paramètres est importante, car leur effet prépondérant dans l'incertitude paramétrique des modèles multimédia d'exposition a été démontré à plusieurs reprises (INERIS 2004, 2005, 2006).

Certains de ces coefficients de transfert (en particulier, ceux permettant d'estimer les concentrations dans les matrices biologiques), nécessitent des procédures complexes de détermination et peuvent être entachés d'une incertitude élevée. Ils peuvent aussi présenter des valeurs très différentes selon les conditions. Il est donc impératif d'utiliser des valeurs de paramètres qui ont été définies avec le meilleur protocole et dans les conditions les plus représentatives du cas d'étude traité.

Or, les bases de données disponibles sont lacunaires et non validées. Elles ne proposent souvent qu'une seule valeur pour ces paramètres, sans que soit précisée l'origine de cette valeur. Dans ces conditions, il est apparu indispensable de réaliser une analyse approfondie des principaux coefficients de transfert et de partage utilisés dans les modèles multimédia de cette étude.

Le travail a porté sur les paramètres suivants :

- le coefficient de partage particules du sol-eau du sol (K_d),
- le coefficient de transfert sol-plante (K_{ps}),
- le coefficient de transfert vers la viande (B_v),
- le coefficient de transfert vers le lait (B_l).

2.4.1 METHODE DE DEFINITION

Le fond documentaire déjà disponible en interne à l'INERIS (ouvrages de synthèse sur le comportement des métaux dans les milieux, articles spécifiques issus de revues) a été complété par une recherche bibliographique par mots-clés.

L'approche générale utilisée est celle décrite ci-dessous. Elle a été conduite de manière plus ou moins complète selon le nombre de publications et de données disponibles.

Pour chacun des paramètres, une fiche de lecture type a été élaborée. Cette fiche a permis de spécifier les caractéristiques du travail décrit dans les publications et les conditions expérimentales dans lesquelles les résultats avaient été obtenus. A ce stade, les données dont les conditions d'obtention n'étaient pas suffisamment précisées ont été éliminées (ainsi les valeurs présentées dans les bases de données n'ont pas été reprises), ainsi que celles obtenues dans des conditions non satisfaisantes (par exemple : les valeurs de K_{ps} obtenues sur des végétaux poussant dans une zone de retombées d'une usine émettant du plomb).

Les facteurs pouvant avoir une influence sur la valeur de ces paramètres ont ensuite été recherchés à partir de la bibliographie, et par analyse statistique à partir du jeu de données recueillies, quand les valeurs collectées étaient suffisamment nombreuses. Le but était de repérer d'éventuelles sous-populations, représentatives de conditions particulières dans un ensemble de valeurs plus larges, afin de sélectionner des valeurs de paramètres plus spécifiques par rapport aux conditions étudiées.

Un ensemble de critères de notation a ensuite été établi afin de définir pour chaque donnée une note représentative de sa qualité intrinsèque et de sa pertinence par rapport aux conditions d'exposition étudiées. Les critères de notation utilisés pour les différents paramètres sont présentés ci-dessous. Pour établir la note finale, un poids a été attribué à chaque critère en fonction de son importance sur le paramètre étudié².

Une distribution de probabilité a ensuite été ajustée à cet ensemble de valeurs notées, selon l'approche par bootstrap proposée par Durrieu (2006).

Pour un échantillon composé de n valeurs, l'approche a consisté à :

- tirer au sort 1000 nouveaux échantillons de n valeurs en fonction de la probabilité attachée à chacune des valeurs initiales (probabilité représentée par la note qui lui avait été attribuée,
- calculer la moyenne et l'écart de chacun des 1000 nouveaux échantillons,
- vérifier par un test de Kolmogorov-Smirnov, l'adéquation des échantillons tirés au sort avec une distribution lognormale ayant pour moyenne la moyenne des 1000 échantillons et pour écart-type la moyenne des écart-types.

2 Même si les notes établies reflètent un certain degré de subjectivité, elles permettent d'attribuer plus de poids aux données les plus représentatives.

2.4.2 RESULTATS

2.4.2.1 COEFFICIENT DE PARTAGE PARTICULES DU SOL-EAU DU SOL (K_d)

Le coefficient de partition particule du sol-eau du sol correspond au rapport entre la concentration de polluant adsorbé sur les particules du sol (C_s) et la concentration de polluant dans l'eau du sol à l'équilibre (C_e).

$$K_d = \frac{C_s}{C_e} \quad \text{Équation 1}$$

2.4.2.1.1 ANALYSE DES TRAVAUX DE L'US EPA

L'US EPA a publié, en 1999 (b), une analyse des données de K_d disponibles dans la littérature. A partir d'un travail de collecte étendue (245 publications étudiées pour la définition du coefficient de partage de huit métaux différents) et d'une analyse de la représentativité des données par rapport aux conditions de sols réelles, 31 valeurs de K_d (relatifs à des sols) ont été répertoriées pour le plomb. A partir de ces données, une distribution normale de moyenne 3,7 d'écart-type 1,2 a été attribuée à $\log(K_d)$. Toutefois, l'hypothèse d'adéquation à la loi normale n'a pas été démontrée de manière significative.

2.4.2.1.2 ANALYSE DE PUBLICATIONS PRIMAIRES ET DEFINITION D'UNE DISTRIBUTION STATISTIQUE

Dans le cadre de cette étude, trois publications originales (King, 1988, Buchter *et al.*, 1989 et Sastre, 2006) portant sur l'adsorption du plomb sur les sols ont été répertoriées. Elles ont permis de recalculer 28 valeurs de K_d d'adsorption :

- 17 valeurs sont issues de la publication de King. Elles ont été calculées à partir des données de la publication selon la formule suivante :

$$K_d = \frac{C_s}{(1 - t_{\text{sorb}}) \times C_i} \quad \text{Équation 2}$$

avec C_s : concentration dans le sol,

C_i : concentration initiale dans la solution,

et t_{sorb} : pourcentage de plomb absorbé présent dans la solution initiale.

Les valeurs de k_d obtenues sont faibles, car les concentrations dans la solution initiale (200 mg/l) et dans la solution à l'équilibre sont élevées (1 à 100 mg/l d'après RIVM, 1992) par rapport aux concentrations en milieu environnemental,

- 9 valeurs sont issues de Buchter *et al.* Elles sont été calculées à partir des paramètres K_p et n définis pour l'isotherme d'absorption³, à partir de la relation suivante :

³ Isotherme de Freundlich de la forme suivante : $C_s = K_p \times C_e^n$

$$K_d = 10^{(\log K_p)} \times C_e^{(n-1)}$$

3

Équation

Les concentrations initiales testées allaient de 0,01 à 100 mg/l. En l'absence d'information sur les concentrations dans la solution à l'équilibre, une concentration C_e égale à 0,1 mg/l a été prise en compte dans les calculs. Cette valeur a été retenue car elle conduit par calcul à l'obtention de concentration adsorbée comprises entre 50 et 1650 mg/kg selon les sols, gamme jugée représentative des sols pollués considérés dans notre étude.

- 2 valeurs sont issues de Sastre. Elles sont déduites des isothermes d'absorption, pour une concentration de plomb en solution tendant vers 0. Elles correspondent donc à des valeurs de K_d très élevées. Une troisième valeur se référant à un sol organique, non représentatif des sols étudiés n'a pas été reprise pour cette étude.

Comme indiqué ci-dessus, le K_d , compte-tenu de son mode de définition, est très dépendant des concentrations de polluant testées. D'après la littérature, il est aussi dépendant de la concentration en matière organique, des teneurs en argiles, en oxydes de fer et de manganèse, et du pH. A partir des données de King, présentant des sols avec une gamme de pH allant de 3,9 à 6,2, un coefficient de corrélation de 0,7 a été obtenu entre le K_d et le pH d'une part, le K_d et la teneur en matière organique d'autre part, les coefficients de corrélation partielle étant de 0,6 dans les deux cas.

Compte-tenu de ces éléments, une note prenant en compte la concentration en plomb du sol, le pH et la matière organique du sol a été établie. Pour ces trois critères, les meilleures notes ont été attribuées aux valeurs considérées comme les plus représentatives d'un sol de potager.

Notes attribuées aux critères

critère 1 : la concentration en plomb adsorbée sur le sol (C_s)

0,1 si $C_s < 30$ mg/kg (car cela correspond à un sol non pollué) ;

0,3 si $C_s > 1000$ mg/kg (car cela correspondant à des sols très pollués, au-delà des concentrations trouvées dans les propriétés des particuliers sur Bourg-Fidèle) ;

1 entre ces deux concentrations ;

critère 2 : le pH du sol

0 si $\text{pH} < 4$;

0,1 si $4 < \text{pH} \leq 5$ ou $8,5 < \text{pH} \leq 9$;

0,3 si $5 < \text{pH} \leq 5,5$ ou $8 < \text{pH} \leq 8,5$;

1 si $5,5 < \text{pH} \leq 8$;

critère 3 : le pourcentage de matière organique du sol (MO)

1 si $1,6 \% \leq \text{MO} \leq 10 \%$;

sinon 0,3.

La note finale est établie par la relation suivante : (critère 1 X 2 + critère 2 X 2 + critère 3) / 5 (cf. Tableau 30).

Tableau 30 : Valeurs de K_d calculées à partir des publications originales et notation

caractéristiques du sol					Valeur K_d (l/kg)	Notes attribuées aux critères			note finale attribuée à la valeur	références bibliographi ques
texture de sol	pH	MO (%)	CEC (cmol/kg)	Cs (mg/kg)		critère 3	critère 2	critère 1		
sa	4,4	0,32	0,5	431	3	0,3	0,1	1	0,5	King, 1988
sa	4,5	0,27	2,5	731	8	0,3	0,1	1	0,5	King, 1988
li	4,6	0,87	5,6	1399	14	0,3	0,1	0,3	0,22	King, 1988
ar	4,1	0,78	4,1	1021	19	0,3	0,1	0,3	0,22	King, 1988
ar	4,7	0,78	23,6	1261	22	0,3	0,1	0,3	0,22	King, 1988
ar	4,8	0,61	2,9	1182	22	0,3	0,1	0,3	0,22	King, 1988
sa	5,2	1,15	1,1	1099	25	0,3	0,3	0,3	0,3	King, 1988
sa	4,2	2,83	1,4	1180	37	1	0,1	0,3	0,36	King, 1988
sa	3,9	4,73	3,2	1242	56	1	0	0,3	0,32	King, 1988
ar	5,4	0,63	14,5	1261	63	0,3	0,3	0,3	0,3	King, 1988
sa	4,7	2,36	5,4	1300	90	1	0,1	0,3	0,36	King, 1988
li	5,4	4,76	9,6	1310	93	1	0,3	0,3	0,44	King, 1988
sa	5,4	0,25	24,7	1310	109	0,3	0,3	0,3	0,3	King, 1988
sa	4,3	3,31	2,7	25	247	1	0,1	0,1	0,28	Buchter,1989
ar	5,1	2,04	5,8	1370	341	1	0,3	0,3	0,44	King, 1988
ar	5,6	0,72	2,2	178	513	0,3	1	1	0,86	Buchter,1989
ar	6,2	2,58	10,2	1389	692	1	1	0,3	0,72	King, 1988
sa	5,5	3,38	4	1389	692	1	0,3	0,3	0,44	King, 1988
ar	6,5	2,08	10,1	1389	692	1	1	0,3	0,72	King, 1988
sa	6,9	0,35	4,1	70	698	0,3	1	1	0,86	Buchter,1989
sa	5,5	2,25	1,4	85	853	1	0,3	1	0,72	Buchter,1989
li	6,0	2,79	11	171	1714	1	1	1	1	Buchter,1989
sa	6,0	11,36	22,5	178	1778	0,3	1	1	0,86	Buchter,1989
ar	4,8	2,57	30,2	254	2535	1	0,1	1	0,64	Buchter,1989
sa	3,9	19,37	26,9	254	2541	0,3	0	1	0,46	Buchter,1989
ar	2,9	8,00	82	206	5400	1	0	1	0,6	Sastre,2005
li	6,6	1,39	8,6	1648	16482	0,3	1	0,3	0,58	Buchter,1989
ar	1,5	8,30	33,6	206	127500	1	0	1	0,6	Sastre,2005

(1) sa : sol sableux, li : sol limoneux, ar : sol argileux

L'approche par bootstrap décrite plus haut a conduit à l'obtention d'une distribution normale de moyenne 2,7 et d'écart-type 1,0 pour le log K_d .

2.4.2.1.3 DONNEES RETENUES

Le jeu de données recueillies et la distribution obtenue ci-dessus sont cohérents avec celle proposée par l'US EPA (1999 b). Toutefois, des informations incomplètes ayant nécessité de recourir à des hypothèses pour établir ce jeu de données et compte-tenu de l'étendue de la recherche bibliographique réalisée par l'US EPA, c'est la distribution établie par cet organisme qui a été retenue dans l'exercice de comparaison des chaînes de modélisation sur le cas type.

Tenant compte de l'ensemble des données relevées dans la littérature (IAEA, 1994 ; Baes, 1982 ; RIVM, 1992), cette distribution a été bornée par les valeurs 0,7 et 5,0. Dans le cadre de la comparaison mesures/modèles, cette distribution, qui induit une très forte variabilité du K_d , est apparue avoir une forte sensibilité sur les résultats, et elle a été revue.

La valeur déterministe retenue ($\log K_d = 4,2$) est identique à celle du GCNC. Elle est supérieure à la moyenne de la distribution dans une volonté de privilégier une approche prudente.

Tableau 31 : Valeur et distribution de K_d (l/kg) utilisées

	$\log K_d$
valeur déterministe	4,2
distribution statistique	N (3,7 ; 1,2 ; 0,7 ; 5,0)

2.4.2.2 COEFFICIENTS DE TRANSFERT SOL-PLANTE

Le coefficient de transfert sol-plante correspond au rapport entre la concentration mesurée dans la plante (C_p) et la concentration de polluant dans le sol (C_s).

$$K_{ps} = \frac{C_p}{C_s} \quad \text{Équation 4}$$

2.4.2.2.1 TRAVAUX DE SYNTHESE DISPONIBLES

Parmi les travaux conséquents de collecte et d'analyse de données sur les K_{ps} , il y a ceux du RIVM (2001c) et de l'US Department of Energy (US DOE, 1998). Toutefois, ces données n'ont pas été utilisées.

En effet, le RIVM a recueilli 835 mesures de K_{ps} , mais aucune information n'est fournie sur le mode de contamination des plantes. En particulier, il n'est pas indiqué si ces végétaux étaient exposés à une source de contamination atmosphérique particulière (cultures proches d'une route ou sous le panache d'émissions industrielles) ou si l'apport de plomb était lié à un amendement par des boues. Or, il est connu que les modalités de transfert des polluants entre le sol et la plante sont modifiées par la présence de boues.

Quant à l'US DOE, il a défini un modèle de régression entre la concentration dans les végétaux et la concentration dans les sols à partir de 189 mesures faites sur des feuilles et des tiges. Le modèle recommandé montre une faible relation

linéaire ($r^2=0,243$) entre le logarithme népérien de la concentration dans les plantes et le logarithme népérien de la concentration dans le sol. Malheureusement, les données ont été collectées indifféremment, qu'il s'agisse de cultures en pot ou en plein champ, et quelle que soit la source de contamination (apport de boues ou non).

2.4.2.2.2 ANALYSES DES DONNEES COLLECTEES

146 valeurs (en excluant les données obtenues sur des sols contaminés par des boues et celles où une contamination par dépôt atmosphérique étaient possibles) ont pu être collectées à partir d'articles scientifiques originaux ou de compilation fournissant précisément les conditions expérimentales d'obtention.

Les caractéristiques de sol (pH, taux de matières organiques, CEC, texture), les conditions de culture (en pot ou en plein champ), les caractéristiques de la contamination (concentration dans le sol, origine de la pollution) ont été relevées.

Malgré le nombre élevé de valeurs collectées et le fait que certains de ces paramètres (pH en particulier) soient considérés dans la littérature comme ayant un impact sur le transfert sol-plante (US EPA, 2006, Ponserre, 2006), les représentations graphiques et le calcul des coefficients de corrélation et de corrélation partielle n'ont laissé apparaître, dans notre jeu de données, aucune relation entre les K_{ps} et les caractéristiques du sol.

En revanche et conformément à ce qui est rapporté dans la littérature, les valeurs de K_{ps} relevées à partir de culture en pot sont, dans notre jeu de données, sensiblement supérieures à celles obtenues à partir de culture en plein champ. Les données sur les cultures en pot correspondent, par ailleurs, à des concentrations de plomb dans les sols élevées, dues à des apports de déchets miniers. Elles ont été éliminées de notre jeu de données, car elles sont peu représentatives de la situation à laquelle s'intéresse cette étude.

A partir des données restantes (84 valeurs), les tendances suivantes ont été observées et testées de manière significative par un test de Friedman sous Statistica :

concentrations dans les légumes feuilles et le fourrage > concentrations dans les fruits et les légumes racines > concentrations dans les céréales

Le choix a donc été fait de définir des distributions par catégorie de végétaux.

Selon les catégories de végétaux (après élimination des données ne satisfaisant pas aux contraintes imposées), un ensemble de 7 à 28 valeurs de K_{ps} reste disponible.

2.4.2.2.3 DONNEES RETENUES

Chacune de ces données a été notée selon quatre critères : deux relatifs à la représentativité de la donnée par rapport aux situations étudiées dans les évaluations de risque (pH et concentration de plomb dans le sol), deux liées à la qualité intrinsèque de la donnée (maîtrise de la contamination atmosphérique et procédures qualité mises en place).

Notes attribuées aux critères

critère 1 : le pH du sol

- 0 si $\text{pH} < 4$;
- 0,1 si $4 < \text{pH} \leq 5$ ou $8,5 < \text{pH} \leq 9$;
- 0,3 si $5 < \text{pH} \leq 5,5$ ou $8 < \text{pH} \leq 8,5$;
- 1 si $5,5 < \text{pH} \leq 8$;

critère 2 : la concentration en plomb dans le sol (C_s)

- 0,2 si $C_s < 30 \text{ mg/kg}$ (car cela correspond à un sol non pollué) ;
- 0,5 si $30 \text{ mg/kg} < C_s < 100 \text{ mg/kg}$;
- 1 si $100 \text{ mg/kg} < C_s < 500 \text{ mg/kg}$;
- 0,5 si $500 \text{ mg/kg} < C_s < 1000 \text{ mg/kg}$;
- 0,2 si $C_s > 1000 \text{ mg/kg}$ (car cela correspond à des sols très pollués, au-delà des concentrations trouvées dans les propriétés des particuliers sur Bourg-Fidèle) ;

critère 3 : la maîtrise de la contamination atmosphérique

- 1 si la mise en place de moyens techniques a permis d'éviter les dépôts atmosphériques sur les végétaux ;
- 0,7 si ces moyens n'existent pas, mais que le dépôt atmosphérique correspond au bruit de fond rural ;
- 0,3 si le dépôt atmosphérique reste faible (absence de source d'émissions particulières) mais qu'il est supposé supérieur au bruit de fond rural ;

critère 4 : les procédures qualité mises en place

- note basée sur le jugement d'experts :
- 1 pour une démarche très satisfaisante ;
- 0,8 pour une démarche correcte mais incomplète ;
- 0,2 pour une démarche peu satisfaisante.

La note finale est établie par la relation suivante : (critère 1 X 2 + critère 2 X 2 + critère 3 x 4 + critère 4) / 9 (cf. Tableau 32).

Tableau 32 : Données collectées pour les légumes-feuilles et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K _{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
laitue	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	3,6E-02	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche6
laitue	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,3E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
laitue	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,3E+00	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
laitue	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,0E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
laitue	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	2,4E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
laitue	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	5,2E-03	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
batavia	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	4,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6
batavia	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	1,3E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
batavia	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
bette	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
bette	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
endive	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	2,1E-02	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
endive	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	2,8E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
épinard	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	1,5E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN

Tableau 32 (suite) : Données collectées pour les légumes-feuilles et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
épinard	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	3,6E-02	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
poireau	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	4,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6

Tableau 33 : Données collectées pour les légumes-fruits et les fruits et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
chou de Bruxelles	6.2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	2.1E-03	1	1	0.3	1	0.69	ZUPAN
haricot	6.0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	2.0E-03	1	0.5	0.3	0.8	0.56	Tremel-Shaub, 2005./fiche 6
haricot	8.2	sa	22	3	phytosanitaires	15	4.0E-03	0.3	0.2	0.7	0.8	0.51	Tremel-Shaub, 2005./fiche9
haricot	7.7	li	40	6	dép atm ind	30	1.3E-03	1	0.5	0	0.8	0.42	Tremel-Shaub, 2005./fiche10
haricot	6.4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	9.9E-03	1	0.5	0.3	1	0.58	ZUPAN
haricot	6.2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	5.8E-03	1	1	0.3	1	0.69	ZUPAN
tomate	6.2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	2.8E-03	1	1	0.3	1	0.69	ZUPAN

Tableau 34 : Données collectées pour les légumes-racines et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
betterave	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	1,1E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
betterave	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	2,0E-03	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
carotte	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	2,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	Tremel-fiche6
carotte	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	5,3E-03	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
carotte	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	6,2E-03	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
carotte	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	3,3E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
oignon	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	2,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
pomme de terre	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	6,0E-04	1	0,5	0,3	0,8	0,56	Tremel-fiche6
pomme de terre	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	1,3E-03	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
pomme de terre	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-04	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
pomme de terre	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
pomme de terre	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	1,5E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
pomme de terre	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	3,1E-03	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN

Tableau 34 (suite) : Données collectées pour les légumes-racines et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
radis	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	1,4E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
radis	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	1,1E-02	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN

Tableau 35 : Données collectées pour le fourrage et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
blé	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,7E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
blé	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,0E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
blé	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	1,4E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
blé	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	1,9E-02	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
blé albis	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
blé albis	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
blé frisal	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10

Tableau 35 (suite) : Données collectées pour le fourrage et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
blé frisal	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
dactyle	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	8,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6
dactyle	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,0E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
Dactyle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
Dactyle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
Dactyle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
Dactyle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	3,3E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
orge	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	8,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6
orge	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	8,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6
orge	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,0E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
orge hockey	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,3E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10

Tableau 35 (suite) : Données collectées pour le fourrage et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K_{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
orge michka	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,3E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
orge michka	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
plantain	6,4	li	23	8	dépôt ind et urbain	51	3,4E-02	1	0,5	0,3	1	0,58	ZUPAN
plantain	6,2	li	19	7	dépôt ind et urbain	242	3,6E-02	1	1	0,3	1	0,69	ZUPAN
trèfle	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	1,3E-02	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
Trèfle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
Trèfle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
Trèfle	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
triticale	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,7E-02	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
trèfle	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	4,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6

Tableau 36 : Données collectées pour les céréales et notation

espèce	pH	texture de sol	% argile	%MO	Origine de la contamination	C° sol mg/kg DW	valeur K _{ps} (kg sec/kg sec)	critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	note finale	références bibliographiques
blé albis	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
blé albis	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	6,7E-04	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
blé frisal	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
blé frisal	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
orge hockey	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	2,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
orge michka	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	2,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
orge michka	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	1,0E-03	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
triticale	7,7	li	40	6	dép atm ind	30	3,3E-04	1	0,5	0	0,80	0,42	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche10
blé	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	4,7E-03	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
blé	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,0E-03	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9
orge	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	1,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6
orge	6,0	li	32	6	géo+boues passées+retombées	50	1,0E-03	1	0,5	0,3	0,8	0,56	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche 6
orge	8,2	sa	22	3	phytosanitaires	15	2,0E-03	0,3	0,2	0,7	0,8	0,51	TREMEL-SHAUB, 2005/fiche9

Par technique bootstrap, une distribution lognormale a été ajustée à chaque groupe de valeurs (se rapportant à une catégorie de végétaux), pondérées par sa note finale.

De plus, chaque distribution a été bornée par une valeur minimale égale au percentile 0,5 et une valeur maximale égale au percentile 99,5, afin d'éviter, comme dans US DOe (2003 c), le tirage au sort de valeurs aberrantes.

Les valeurs déterministes correspondent aux valeurs maximales relevées pour chaque catégorie de végétaux, conformément aux pratiques généralement retenues, lors des ERS faites dans le cadre des études d'impact⁴.

Tableau 37 : Valeurs et distributions des K_{ps} ($\text{mg.kg}^{-1} \text{ sec}/(\text{mg.kg}^{-1} \text{ sec})$) utilisées

Type de végétaux	Valeur déterministe	Distribution
légumes-feuilles	4.10^{-2}	LN ($3,0.10^{-2}$; $4,6.10^{-2}$; $9,6.10^{-4}$; $2,8.10^{-1}$)
Légumes-fruits et fruits	10^{-2}	LN ($4,2.10^{-3}$; $3,1.10^{-3}$; $6,1.10^{-4}$; $1,9.10^{-2}$)
Légumes-racines	2.10^{-2}	LN ($5,7.10^{-3}$; $7,3.10^{-3}$; $2,7.10^{-4}$; $4,5.10^{-2}$)
Fourrage et ensilage	4.10^{-2}	LN ($1,4.10^{-2}$; $8,4.10^{-3}$; $2,8.10^{-3}$; $5,0.10^{-2}$)
Céréales	5.10^{-3}	LN ($1,5.10^{-3}$; $9,4.10^{-4}$; $2,9.10^{-4}$; $5,6.10^{-3}$)

2.4.2.3 COEFFICIENT DE TRANSFERT VERS LE LAIT

Le coefficient de transfert vers le lait correspond au rapport entre la concentration mesurée dans le lait de vache (C_l) et la quantité de polluant ingérée par la vache par jour (Q).

$$B_l = \frac{C_l}{Q} \quad \text{Équation 5}$$

Dix valeurs de coefficient de transfert vers le lait de vache ont été obtenues à partir de la littérature. Les valeurs obtenues avec une dose d'exposition très importante, ayant entraîné un effet toxique chez l'animal n'ont pas été prises en compte.

Selon les cas, le plomb était présent dans les aliments fournis à l'animal ou était ajouté aux aliments sous forme de sels ou de boues. Bien que le test de comparaison des population (test de Friedman sous Statistica ne soit pas significatif (compte-tenu du faible nombre de données), B_l semble plus faible, quand l'apport de plomb a été fait sous forme de boues. Par ailleurs, les données obtenues sont trop peu nombreuses pour tester l'effet de Q sur B_l .

Dans les cas d'un apport de plomb aux aliments sous forme de sels ou de boues, le coefficient de transfert a été calculé de la manière suivante :

$$B_l = \frac{C_{lt} - C_{lc}}{Q_t - Q_c} \quad \text{Équation 6}$$

4 Pour les légumes-feuilles, la valeur de 13, bien supérieure à toutes les autres valeurs, n'a toutefois pas été prise en compte.

avec C_{lt} : la concentration de plomb dans le lait des vaches traitées par un ajout de plomb à l'alimentation

C_{lc} : la concentration de plomb dans le lait des vaches servant de groupe de contrôle,

Q_t : la quantité de plomb totale ingérée par jour par les vaches traitées,

Q_c : la quantité de plomb ingérée par les vaches du groupe de contrôle par le biais de leur alimentation (non supplémentée en plomb).

En outre, certaines expérimentations ayant été trop courtes pour que l'état stationnaire ait été atteint dans le lait des vaches, la valeur du coefficient de transfert à l'état stationnaire a été estimé en considérant une cinétique de décroissance du plomb dans l'organisme du premier ordre, comme proposée par Stevens (1991) :

$$B_{l(stat)} = \frac{B_{l_app}(t)}{(1 - \exp(-k \times t))} \quad \text{Équation 7}$$

avec B_{lstat} : coefficient de transfert à l'état stationnaire,

$B_{l_app}(t)$: coefficient de transfert apparent à l'instant t , calculé à partir de l'équation 2,

t : durée entre le début de la période d'exposition des animaux et la date de prélèvement du lait,

k : constante de décroissance du plomb chez la vache,

$$k = \ln(2) / T_{1/2} \quad \text{Équation 8}$$

et $T_{1/2}$: demi-vie du plomb chez la vache (Sharma *et al.*, 1992 donnent une demi-vie de 45 jours).

Les données ont été notées selon quatre critères.

Notes attribuées aux critères

critère 1 : le type de contamination

- 0,1 si apport de boues ;
- 0,5 si dépôts de cheminée ;
- 0,8 si apport de sels de plomb ;
- 1 plomb présent dans les aliments ;

critère 2 : la durée de l'expérimentation

- 0 si exposition ponctuelle ;
- 0,2 si durée inférieure à 30 jours ;
- 0,5 si durée inférieure à 135 jours (soit $3 \times T_{1/2}$) ;
- 1 au delà ;

critère 3 : la connaissance de la quantité ingérée par l'animal

- 0 si mauvaise ;
- 0,2 si faible ;
- 0,7 si moyenne ;
- 1 si bonne ;

critère 4 : la qualité de la donnée

Note tenant compte de la représentativité de la dose testée par rapport à une situation de contamination environnementale, du nombre d'animaux testés, de la fourniture ou non d'un écart-type et de sa largeur. Chacun de ces trois points représentant 1/3 de la note attribuée au critère 4 sont définis selon l'approche suivante :

- si doses testées représentatives d'une situation de contamination environnementale, 1, sinon 0,5 ;
- si nombre d'animaux testés supérieur ou égal à 5, 1, si nombre < 3, 0,2, sinon 0,5 ;
- si écart-type petit, 1 sinon 0,5.

La note finale est établie par la relation suivante : $(\text{critère 1} \times 3 + \text{critère 2} + \text{critère 3} \times 3 + \text{critère 4}) / 8$.

Le jeu de données utilisé est fourni dans le tableau ci-dessous.

.

Tableau 38 : Valeurs de B_i calculées à partir des publications et notation

Conditions de l'expérimentation				Valeur de $B_i(j/l)$	Notes attribuées aux critères				note finale attribuée à la valeur	références bibliographiques
nb d'anx testés	durée de l'expo (j)	type d'apport	quantité ingérée par jour(mgPb/j)		critère 1	critère 2	critère 3	critère 4		
12	90	aliment	50	1,4E-04	1	0,5	1	1	0,94	Vreman,1986
8	930	aliment	50	4,0E-05	1	1	1	1	1	Vreman,1986
4	5	nitrate de Pb		1,4E-05	0,8	0	1	0,5	0,74	Stanley,1971 cité dans Stevens, 1991
2	14	carbonate de Pb	4266	2,4E-04	0,8	0,2	1	0,1	0,71	Lynch,1974 cité dans Stevens, 1991
12	90	acétate de Pb	200	7,1E-05	0,8	0,5	1	1	0,86	Vreman,1986
4	90	acétate de Pb	500	1,7E-04	0,8	0,5	1	0,6	0,81	Sharma, 1982 cité dans Stevens, 1991
8	930	acétate de Pb	200	2,7E-05	0,8	1	1	1	0,93	Vreman,1986
non renseigné	365	dépôts atmosphériques issus de cheminées	2600	1,2E-05	0,5	1	0	0,15	0,33	Stevens, 1991(Dorn,1974)
8	930	boues	164	2,6E-05	0,1	1	1	1	0,66	Vreman,1986
8	930	boues	168	1,7E-05	0,1	1	1	1	0,66	Vreman,1986

La distribution statistique obtenue est une distribution lognormale, qui a été bornée par les percentiles 0,5 et 99,5, afin d'éviter, comme dans US DOe (2003 c), le tirage au sort de valeurs aberrantes,.

La valeur déterministe correspond à la valeur la plus élevée du jeu de données conformément aux pratiques généralement retenues, lors des ERS faites dans le cadre des études d'impact.

Tableau 39 : Valeurs et distributions de B_i utilisées ($j.l^{-1}$)

Valeur déterministe retenue	$2,4.10^{-4}$
Distribution	LN ($8,1.10^{-5}$; $1,0.10^{-4}$; $4,1.10^{-6}$; $6,2.10^{-4}$)

2.4.2.4 COEFFICIENT DE TRANSFERT VERS LA VIANDE DE BOEUF

Le coefficient de transfert vers le bœuf correspond au rapport entre la concentration mesurée dans la viande (C_v) et la quantité de polluant ingérée par l'animal par jour (Q).

$$B_v = \frac{C_v}{Q} \quad \text{Équation 9}$$

Quinze valeurs de coefficient de transfert vers la viande de bœuf ou de vache ont été calculées à partir de données de la littérature. Sept autres valeurs ont été obtenues à partir d'autres espèces telles que l'agneau, le caribou et le mouton. Dans la mesure où les B_v obtenus à partir d'essais sur bovins et ceux obtenus à partir d'autres espèces ne montrent pas de divergence d'une part, et que d'autre part les consommations de viande de bœuf prises en compte dans les modèles utilisés intègrent toutes les quantités de viande consommées, en dehors de la volaille et du porc, les données obtenues sur les différentes espèces ont été intégrées dans un même jeu de données.

Le plomb apporté aux animaux testés est soit lié aux aliments, soit ajouté sous forme de sels ou de boues à ces aliments. Aucune relation entre le type d'apport et la valeur du coefficient de transfert n'a pu être mise en évidence (comparaison des populations par tests des signes et test de Friedman sous Statistica).

Comme précédemment, dans les cas d'un apport de plomb aux aliments sous forme de sels ou de boues, le coefficient de transfert a été calculé en référence à la concentration et à l'apport reçu par un groupe de contrôle (cf. Equation 5).

Les valeurs obtenues chez les bovins à partir d'essais courts ont également été ajustées pour tenir compte du fait que l'état stationnaire n'est pas atteint à l'abattage. Stevens rapporte une demi-vie dans le muscle de 14 jours pour le plomb. Cette valeur paraît très courte⁵. En l'absence d'autres données, la même demi-vie que celle utilisée pour la vache laitière a été utilisée. Le manque de précision sur cette demi-vie a toutefois un impact limité sur les B_v calculés à l'état stationnaire, la durée minimale des essais pour les valeurs répertoriées étant de 90 jours.

Le jeu de données utilisé est fourni ci-dessous.

Des valeurs de coefficients de transfert égales à 0 ont été obtenues (lorsque les concentrations mesurées dans la viande d'animaux ayant subi un apport de plomb sous forme de boues ou de sels se sont révélées identiques à celles des animaux du groupe de contrôle). Pour la procédure de calcul par bootstrap, ces données ont été assimilées à la valeur de B_v non nulle la plus faible. Dans d'autres cas, les concentrations mesurées étaient inférieures à la limite de détection. Les B_v ont alors été estimés par excès en les assimilant à la valeur maximale pouvant être atteinte, compte-tenu des limites de détection.

Les données ont été notées sur cinq critères :

Notes attribuées aux critères

critère 1 : le type de contamination

- 0,1 si apport de boues ;
- 0,5 si dépôts de cheminée ;
- 0,8 si apport de sels de plomb ;
- 1 si plomb présent dans les aliments ;

critère 2 : la durée de l'expérimentation

- 0 si exposition ponctuelle ;
- 0,2 si durée courte (<30 jours) ;
- 0,5 si la durée est plus longue mais reste insuffisante pour que l'état stationnaire soit atteint ;
- 1 si la durée est suffisante pour que l'état stationnaire soit atteint ;

critère 3 : la connaissance de la quantité ingérée par l'animal

- 0 si mauvaise ;
- 0,2 si faible ;
- 0,7 si moyenne ;
- 1 si bonne ;

critère 4 : la représentativité de la donnée

note tenant compte de la représentativité de la dose testée par rapport à une situation de contamination environnementale et du type d'animal testé. Ces deux éléments représentent la moitié de la note attribuée au critère 4.

⁵ La demi-vie du plomb dans l'organisme du bœuf devrait en effet être plus longue que dans l'organisme de la vache laitière, qui excrète une partie du plomb ingéré dans le lait.

Ils sont définis de la manière suivante :

- si les doses testées sont représentatives d'une situation de contamination environnementale, la note est égale à 1, sinon 0,5 ;
- si l'animal testé est un des animaux pour lesquels les quantités consommées sont assimilées à de la viande bovine dans les modèles multimédia étudiés (à savoir la viande bovine, la viande d'ovin et de cheval), 1 sinon 0,5 ;

critère 5 : la qualité de la donnée

note tenant compte du nombre d'animaux testés et de la fourniture ou non d'un écart-type et de sa largeur. Ces deux éléments représentent chacun la moitié de la note attribuée au critère 5. Ils sont définis de la manière suivante :

- si le nombre d'animaux testés est supérieur ou égal à 5, 1, si nombre < 3, 0,2, sinon 0,5 ;
- si l'écart-type est petit, 1 sinon 0,5.

La note finale est établie par la relation suivante : $(\text{critère 1} \times 2 + \text{critère 2} + \text{critère 3} \times 3 + \text{critère 4} + \text{critère 5}) / 8$.

Tableau 40 : Valeurs de B_v calculées à partir des publications et notation

conditions de l'expérimentation					B _v (j/kg frais) retenu	Notes attribuées aux critères					note finale attribuée à la valeur	Références bibliographiques
animal testé	nb d'anx	durée (j)	contamination	apport (mgPb/j)		critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	critère 5		
bœuf	6	106	boues	507	< 2,0E-05	0,1	0,5	1	0,65	1	0,67	Johnson, 1981
bœuf	6	94	boues	475	2,3E-04	0,1	0,5	0	1	1	0,34	Boyer, 1981
bœuf	3		alim+ (?)boues	290	6,9E-04	0,5	0,5	0	0,25	1	0,34	Nelmes, 1974 cité dans Ng,1982
bœuf	16	100	Chromate de plomb	493	< 2,0E-04	0,8	0,5	1	0,65	1	0,84	Dinius, 1969 cité dans Stevens, 1992
bœuf	8	168	boues	110	7,3E-03	0,1	0,5	0	0,5	1	0,28	Bertrand, 1981
bœuf	8	168	boues	204,8	3,3E-03	0,1	0,5	0	0,5	1	0,28	Bertrand, 1981
vache	4	90	contrôle	50	1,4E-03	1	0,5	1	0,75	0,75	0,88	Vreman, 1986
vache	4	90	acétate de Pb	200	0,0E+00	0,8	0,5	1	0,75	1	0,86	Vreman, 1986
vache	2	930	contrôle	50	2,0E-04	1	1	1	0,2	0,75	0,87	Vreman, 1986
vache	2	930	acétate de Pb	200	6,7E-05	0,8	1	1	0,2	1	0,85	Vreman, 1986
vache	1	930	boues	164	8,8E-05	0,1	1	1	0,2	1	0,68	Vreman, 1986
vache	2	930	boues	168	8,5E-05	0,1	1	1	0,2	1	0,68	Vreman, 1986
vache laitière	4	90	Acétate de plomb	467	< 7,5E-05	0,8	0,5	1	0,4	1	0,81	Sharma, 1980 cité dans Stevens,1992
vache laitière	12	90	Acétate de plomb	165	6,8E-04	0,8	0,5	1	0,5	1	0,83	Sharma, 1982 cité dans Vreman, 1986
vache laitière	12	90	Acétate de plomb	566	< 6,0E-05	0,8	0,5	1	0,65	1	0,84	Sharma, 1982 cité dans Stevens, 1992
agneaux	10	90	boues	26,4	3,3E-02	0,1	0,5	1	0,5	1	0,65	Sanson et al., 1984

Tableau 40 (suite) : Valeurs de B_v calculées à partir des publications et notation

conditions de l'expérimentation					B _v (j/kg frais) retenu	Notes attribuées aux critères					note finale attribuée à la valeur	Références bibliographiques
animal testé	nb d'anx	durée (j)	contamination	apport (mgPb/j)		critère 1	critère 2	critère 3	critère 4	critère 5		
caribou			dépôt radio		1,0E-04	0,2	0,3	0	0,25	0	0,12	Ng, 1982
caribou			dépôt radio		2,1E-04	0,2	0,3	0	0,25	0	0,12	Ng, 1982
caribou			dépôt radio		6,0E-04	0,2	0,3	0	0,25	0	0,12	Ng, 1982
mouton	8	90	acétate de Pb	13,6	0	0,8	0,5	1	1	0,5	0,83	Veen, 1986
mouton	8	90	acétate de Pb	16,7	0	0,8	0,5	1	1	0,5	0,83	Veen, 1986
mouton	8	90	boues	18,5	0	0,1	0,5	1	1	0,5	0,65	Veen, 1986

A partir des données notées, une distribution lognormale bornée par les percentiles 0,5 et 99,5 a été arrêtée, afin d'éviter le tirage au sort de valeurs aberrantes, comme dans US DOe (2003 c).

La valeur déterministe correspond à la valeur la plus haute relevée chez les bovins conformément aux pratiques généralement retenues, lors des ERS faites dans le cadre des études d'impact.

Tableau 41 : Valeurs et distributions de B_v utilisées

Valeur déterministe (j/kg frais de viande)	$7,3.10^{-3}$
Distribution (j/kg frais de viande)	LN ($8,4.10^{-4}$; $5,0.10^{-3}$; $1,1.10^{-6}$; $1,9.10^{-2}$)

2.4.2.5 FACTEUR DE BIOCONCENTRATION POUR LES AUTRES MATRICES ANIMALES

Aucune donnée spécifique n'a été trouvée dans la littérature concernant le transfert du plomb vers la viande de porc, celle de volaille ou bien vers les œufs.

Sur la base des conclusions de Ng *et al.* (1982) qui a montré, dans une revue bibliographique sur le transfert des radionucléides dans la viande, que les facteurs de bioconcentration restaient relativement constants entre les espèces, alors que les facteurs de transfert pouvaient varier de manière considérable, des facteurs de bioconcentration ont été calculés à partir du jeu de données collectées pour définir le coefficient de transfert dans la viande bovine.

Le coefficient de bioconcentration (BCF) est relié au coefficient de transfert (B_t) par la relation suivante :

$$BCF = B_t \times Q \quad \text{Équation 10}$$

avec Q : quantité d'aliments ou de matrice contaminée par le plomb administré quotidiennement à l'animal.

Ainsi un facteur de bioconcentration a été calculé à partir de chacune des données collectées pour définir le coefficient de transfert vers la viande de bœuf, en utilisant la quantité de matrice administrée à l'animal.

Quatre critères ont été utilisés pour noter les valeurs obtenues, le paramètre de représentativité de l'essai ayant été regroupé avec celui de qualité.

Notes attribuées aux critères

critère 1 : le type de contamination

- 0,1 : si apport de boues ;
- 0,5 : si dépôts de cheminée ;
- 0,8 : si apport de sels de plomb ;
- 1 : plomb présent dans les aliments ;

critère 2 : la durée de l'expérimentation

0 si exposition ponctuelle ;

0,2 si durée courte (<30 jours) ;

0,5 si la durée est plus longue mais reste insuffisante pour que l'état stationnaire soit atteint ;

1 si la durée est suffisante pour que l'état stationnaire soit atteint ;

critère 3 : la connaissance de la quantité ingérée par l'animal

0 si mauvaise ;

0,2 si faible ;

0,7 si moyenne ;

1 si bonne ;

critère 4 : la qualité de la donnée

note tenant compte de représentativité de la dose testée par rapport à une situation de contamination environnementale, du nombre d'animaux testés, de la fourniture ou non d'un écart-type et de sa largeur. Chacun de ces trois points représentant 1/3 de la note attribuée au critère 4 est définie de la manière suivante :

- si les doses testées sont représentatives d'une situation de contamination environnementale : 1, sinon 0,5 ;
- si le nombre d'animaux testés est supérieur ou égal à 5 : 1, si nombre < 3, 0,2, sinon 0,5 ;
- si l'écart-type est petit : 1 sinon 0,5.

La note finale est établie par la relation suivante : $(\text{critère 1} \times 2 + \text{critère 2} + \text{critère 3} \times 3 + \text{critère 4}) / 7$

Tableau 42 : Valeurs de BCF calculées à partir des publications et notation

conditions de l'expérimentation					BCF (kg sec/kg frais) retenu	Notes attribuées aux critères				note finale attribuée à la valeur	Références bibliographiques
animal testé	nb d'anx	durée (j)	contamination	apport (mg Pb/j)		critère 1	critère 2	critère 3	critère 4		
bœuf	6	106	boues	507	< 1,8E-04	0,1	0,5	1	0,65	0,62	Johnson, 1981
bœuf	6	94	boues	475	2,3E-03	0,1	0,5	0	1	0,24	Boyer, 1981
bœuf	3		alim+ (?)boues	290	6,9E-03	0,5	0,5	0	0,25	0,25	Ng,1982 Nelmes,1974 cité dans Ng,1982
bœuf	16	100	Chromate de plomb	493	< 1,0E-04	0,8	0,5	1	0,65	0,82	Dinius, 1969 cité dans Stevens, 1992
bœuf	8	168	boues	110 (1)	7,2E-02	0,1	0,5	0	0,5	0,17	Bertrand, 1981
bœuf	8	168	boues	205 (1)	3,1E-02	0,1	0,5	0	0,5	0,17	Bertrand, 1981
vache	4	90	contrôle	50	2,4E-02	1	0,5	1	0,75	0,89	Vreman, 1986
vache	4	90	acétate de Pb	200	0,0E+00	0,8	0,5	1	0,75	0,84	Vreman, 1986
vache	2	930	aliment	50	4,0E-03	1	1	1	0,2	0,89	Vreman,1986
vache	2	930	acétate de Pb	200	1,3E-03	0,8	1	1	0,2	0,83	Vreman, 1986
vache	1	930	boues	164	1,9E-03	0,1	1	1	0,2	0,63	Vreman,1986
vache	2	930	boues	168	1,8E-03	0,1	1	1	0,2	0,63	Vreman, 1986
vache laitière	4	90	Acétate de plomb	467	< 1,2E-03	0,8	0,5	1	0,4	0,79	Sharma, 1980 cité dans Stevens, 1992
vache laitière	12	90	Acétate de plomb	165	1,2E-02	0,8	0,5	1	0,5	0,80	Vreman,1986(Sharma,, 1982)
vache laitière	12	90	Acétate de plomb	566	< 1,1E-03	0,8	0,5	1	0,65	0,82	Sharma, 1982 cité dans Stevens, 1992

Tableau 42 (suite) : Valeurs de BCF calculées à partir des publications et notation

conditions de l'expérimentation					BCF (kg sec/kg frais) retenu	Notes attribuées aux critères				note finale attribuée à la valeur	Références bibliographiques
animal testé	nb d'anx	durée (j)	contamination	apport (mg Pb/j)		critère 1	critère 2	critère 3	critère 4		
agneaux	10	90	boues	26,4	3,9E-02	0,1	0,5	1	0,5	0,60	Sanson, 1984
caribou			dépôt radio		1,0E-04	0,2	0,3	0	0,25	0,14	Ng,1982
caribou			dépôt radio		2,0E-04	0,2	0,3	0	0,25	0,14	Ng,1982
caribou			dépôt radio		6,0E-04	0,2	0,3	0	0,25	0,14	Ng,1982
mouton	8	90	acétate de Pb	13,6	0	0,8	0,5	1	1	0,87	Veen, 1986
mouton	8	90	acétate de Pb	16,7	0	0,8	0,5	1	1	0,87	Veen, 1986
mouton	8	90	boues	18,5	0	0,1	0,5	1	1	0,67	Veen, 1986

(1) : apport de plomb quotidien estimé sur une hypothèse de 10 kg sec d'aliments consommés par jour

Une distribution lognormale, bornée par les percentiles 0,5 et 99,5, a été arrêtée, comme dans US DOe (2003 c), afin d'éviter le tirage au sort de valeurs aberrantes.

La valeur déterministe correspond à la valeur de BCF calculée la plus élevée conformément aux pratiques généralement retenues, lors des ERS faites dans le cadre des études d'impact.

Tableau 43 : Valeurs et distributions de BCF utilisées

Valeur déterministe (kg sec /kg frais de viande)	$7,2 \cdot 10^{-2}$
Distribution (kg sec /kg frais de viande)	LN ($8,4 \cdot 10^{-3}$; $6,9 \cdot 10^{-2}$; $5,1 \cdot 10^{-6}$; $2,0 \cdot 10^{-1}$)

2.5 PARAMETRES D'ABSORPTION

2.5.1 TAUX DE BIODISPONIBILITE RELATIVE A PARTIR DU SOL

La biodisponibilité réfère à la fraction de plomb administré (c'est-à-dire présent au point de contact avec l'organisme : par voie orale, il s'agit de l'estomac) qui pénètre dans le système sanguin. La biodisponibilité relative (B_s) correspond à la biodisponibilité du plomb à partir d'une matrice particulière divisée par la biodisponibilité du plomb administré sous une forme de référence, comme l'acétate de plomb.

Concrètement, ce paramètre est utilisé pour calculer la concentration de plomb dans les produits animaux et dans le sang des enfants à partir d'une ingestion de sol contaminé. En effet, le plomb dans le sol est supposé moins disponible que s'il est ingéré sous forme dissoute dans l'eau ou même à partir d'une matrice alimentaire.

Ce paramètre multiplié par le taux d'absorption par ingestion permet de définir le taux d'absorption à partir d'une matrice sol.

Le taux de biodisponibilité relative pour le sol est estimé à partir des données présentées dans Schroder *et al.* (2004) et de la revue de données in vivo réalisée par Ruby *et al.* (1999). Des courbes de la concentration mesurée dans le sang en fonction de la quantité de plomb administrée ont été tracées pour différents types de substrat. Les taux de biodisponibilité relative ont été définis comme le rapport de la pente obtenus pour chaque sol avec celle obtenue à partir d'une administration d'acétate de plomb. 28 données obtenues à partir d'essais sur des porcs et sur des singes sont disponibles.

Tableau 44 : Valeurs de B_s collectées

Spéciation du pb (1)	conc. sol (mg/kg)	Nature du substrat	animal testé	valeur Bs(-)
Ca	10800	sol (smelter)	porc	0,58
Ca	4050	sol (yard)	porc	0,8
Ca	6940	sol (mill)	porc	0,79
Ca+O	8350	sol + peinture	porc	0,8
Ca+Sa+O	7510	sol (résidentiel)	porc	0,74
Ca+Sa+O	14200	sol	porc	0,6
Ca+Sa+O	3870	sol (résidentiel)	porc	0,61
Ca+Sa+O (2)	1388	sol	rat	0,35
Ca+Sa+O (2)	2090	sol	rat	0,41
FeO, MnO (2)	4320	sol	porc	0,9
O	10600	mâchefer	porc	0,18
O	7895	mâchefer	porc	0,17
O	11500	mâchefer	porc	0,53
O	3230	sol	porc	0,67
O	2150	sol	porc	0,54
O+Su	3200	sol	porc	0,71
P+Sa	1590	résidu	porc	0,31
Sa	8600	sol	porc	0,19
Sa+Su	6330	résidu	porc	0,28
Sa+Su (2)	3908	déchets de mine	rat	0,093
Sa+Su (2)	3940	déchets de mine	rat	0,225
Sa+Su (2)	7220	résidu	rat	0,147
Sa+Su (2)	6890	résidu	rat	0,087
Sa+Su (2)	10230	résidu	rat	0,36
Su	11200	galène+sol	porc	0,01
Su	1270	résidu	porc	0,06
Su (2)	611000	minerais	rat	0,1
Su (2)	866000	galène	rat	0,1

(1) : Ca : carbonate, O : oxyde, Sa : sulfate, Su : sulfure

(2) : spéciation supposée en fonction de la nature du substrat

Conformément aux éléments rapportés dans la littérature (Ruby *et al.*, 1999, US EPA, 1999 c), la spéciation du plomb dans le sol influence de manière importante la biodisponibilité (cf. Figure 2). La nature du matériau testé joue également (cf. Figure 3).

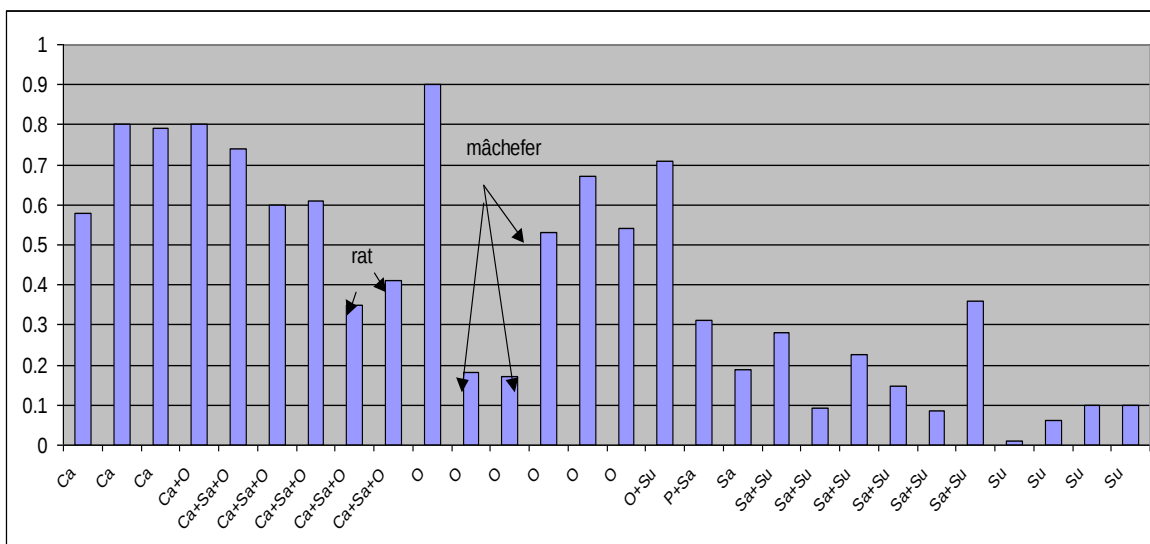


Figure 2 : Taux de biodisponibilité relative en fonction de la spéciation du plomb

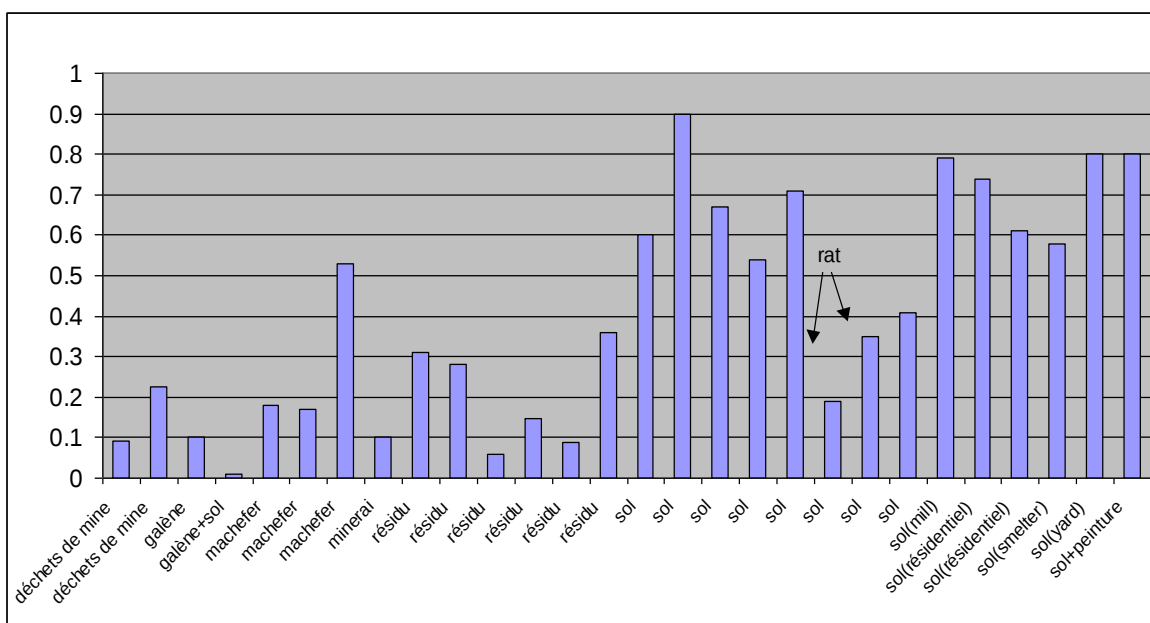


Figure 3 : Taux de biodisponibilité relative en fonction de la nature du substrat

Compte-tenu du type de pollution sur Bourg-Fidèle, les données obtenues à partir de déchets de mine, de minerais ou de résidus ne sont pas représentatifs de la situation étudiée. Par ailleurs, d'après les analyses réalisées par la société Gestion des sites et des sols contaminés (GSC, prélèvements du 17 Juillet 2001, 2002 : microscopie électronique à balayage associée à un spectromètre) sur des particules prélevées à la source d'une part, et des poussières collectées à l'extérieur sur des feuilles ou des supports autocollants d'autre part, le plomb à Bourg-Fidèle semble se présenter principalement sous forme de sulfates et d'oxydes. Il est peu probable qu'il se présente sous des formes très peu solubles, comme les sulfures.

Aussi, seules les données obtenues à partir de vrais sols ont été utilisées pour définir une distribution. Par ajustement graphique, selon le principe de la droite de Henry, une distribution normale de moyenne 0,61 et 0,21 a été définie (cf. Figure 4). La moyenne correspond à la valeur utilisée dans IEUBK. Cette distribution, en outre, a été bornée par les valeurs minimales et maximales relevées pour des sols. La valeur déterministe retenue correspond à la valeur maximale.

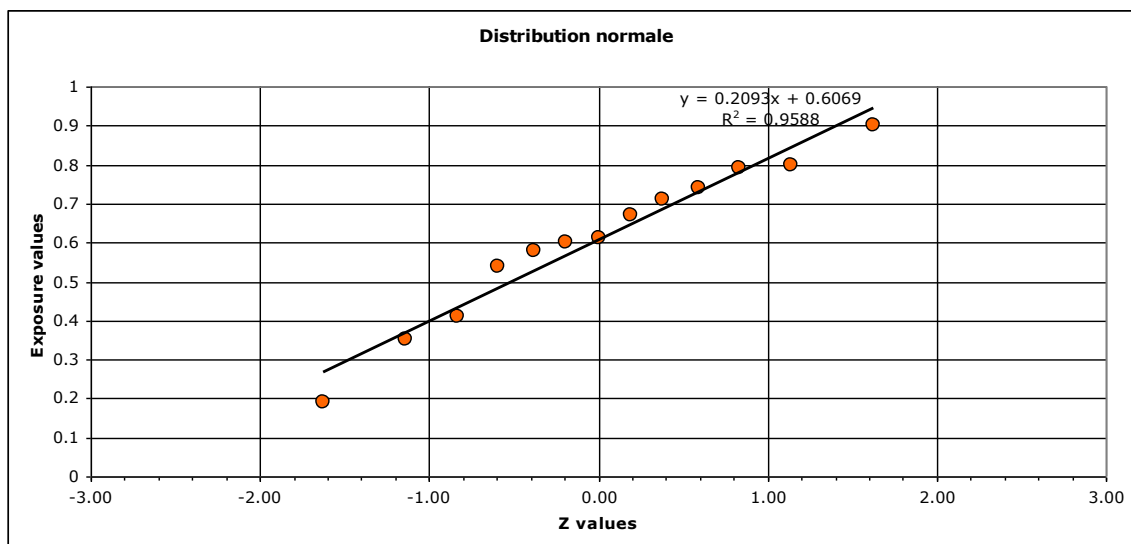


Figure 4 : Ajustement de la distribution des valeurs de Bs retenues à une distribution lognormale

Tableau 45 : Valeur et distribution utilisées pour le taux de biodisponibilité relative à partir du sol

valeur déterministe	0,8
distribution statistique	N (0,61 ; 0,21 ; 0,19 ; 0,8)

2.5.2 TAUX D'ABSORPTION PAR INGESTION

Les valeurs utilisées dans le modèle IEUBK original et les distributions dans ISE sont identiques pour l'absorption d'aliments et l'absorption d'eau.

Dans IEUBK, une valeur de 0,5 est utilisée. Dans ISE, une distribution lognormale de moyenne 0,5 et d'écart-type 0,2 est proposée. Par rapport à l'intervalle de valeurs cité par l'US EPA (1989), à savoir un taux d'absorption allant de 0,42 à 0,53, l'écart-type de la distribution du modèle ISE (dont l'origine n'est pas explicitée) est trop grand. En effet, les bornes inférieures et supérieures données par l'US EPA correspondent respectivement aux 40^{ème} et 63^{ème} percentiles de la distribution du modèle ISE. En utilisant une valeur de 0,05 pour l'écart-type au lieu de 0,2, les bornes de l'intervalle de valeurs données par l'US EPA sont alors respectivement égales aux 5^{ème} et 75^{ème} percentiles de la nouvelle distribution. Les données utilisées pour les simulations sont reportées dans le tableau suivant.

Tableau 46 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'absorption par ingestion

valeur déterministe	0,5
distribution statistique	LN (0,5 ; 0,05)

2.5.3 TAUX D'ABSORPTION PAR INHALATION

ISE ne propose pour ce paramètre qu'une valeur ponctuelle, Dans le cadre de la présente étude, une distribution triangulaire a été définie à partir des informations fournies par l'US EPA dans le manuel d'utilisation de IEUBK (1994 a). Dans ce document, il est indiqué que le taux d'absorption par inhalation chez les jeunes enfants vivant en dehors de zones possédant des sources d'émissions ponctuelles varie de 0,25 à 0,45. Pour ceux vivant près de telles sources, un taux de 0,42 est donné.

Les données utilisées pour les simulations sont reportées dans le tableau suivant :

Tableau 47 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'absorption par inhalation

valeur déterministe	0,42
distribution statistique	T (0,25 ; 0,42 ; 0,45)

2.5.4 FRACTION DE L'ABSORPTION PAR VOIE PASSIVE A FAIBLE DOSE

Selon IEUBK, l'absorption du plomb par voie orale a lieu par deux mécanismes : un mécanisme saturable et un mécanisme insaturable (ou passif). La quantité absorbée par le mécanisme insaturable est proportionnelle à la quantité ingérée. La quantité absorbée par le mécanisme saturable suit en revanche une courbe asymptotique, fonction de la quantité de plomb ingérée.

Le modèle requiert la définition de la fraction d'absorption ayant lieu par voie passive. La distribution lognormale proposée par ISE a été reprise. La moyenne de cette distribution, qui correspond à la valeur employée par IEUBK, a été utilisée comme valeur déterministe dans la présente étude.

Tableau 48 : Valeur et distribution utilisées pour le taux d'absorption par voie passive

valeur déterministe	0,2
distribution statistique	LN (0,2 ; 0,1)

3 VALEURS DES PARAMETRES UTILISEES POUR LA COMPARAISON DES NIVEAUX D'EXPOSITION MODELISEES AVEC LES NIVEAUX D'EXPOSITION MESURES

L'exercice de comparaison a été mené à l'aide des chaînes de modélisation suivantes :

- CalTOX 4.4 + IEUBK recodé.

Cette chaîne de modélisation, que l'on appelle modèle A, vise à représenter la distribution des concentrations de plomb dans les milieux sur l'ensemble du village et pour l'ensemble des enfants y habitant. Les concentrations modélisées sont comparées aux concentrations mesurées dans l'air, le sol superficiel, les végétaux exposés, les végétaux non exposés et le sang ;

- modèle statistique de dépôts + modèle multimédia INERIS + IEUBK recodé.

Cette seconde chaîne de modélisation, que l'on appelle modèle B, permet de calculer les concentrations d'exposition pour un lieu et un enfant donné, en prenant en compte les conditions d'exposition de cet enfant (âge, date d'arrivée dans le village, proportion de fruits et légumes consommés issus du jardin familial, consommation ou non d'eau du robinet). Dans le cadre de la présente étude, la comparaison des résultats du modèle B avec les mesures concernant les concentrations dans les végétaux et les plombémies, données intégratives des expositions par les différents milieux.

Pour cet exercice de comparaison, certains des paramètres ont dû faire l'objet d'une définition particulière. C'est le cas pour des paramètres décrivant le terme source de contamination et des paramètres d'autoconsommation.

3.1 LE TERME SOURCE

Compte-tenu des variations de l'activité et des émissions de l'usine Métal-Blanc au cours de la dernière décennie, la comparaison du plomb dans le sang prélevé en 2002 d'une part et la comparaison des concentrations dans les végétaux collectés entre 2002 et 2005 d'autre part, ont conduit à distinguer ces deux cas de figure pour la définition du terme source.

3.1.1 MODELE A

3.1.1.1 LE FLUX D'EMISSION

3.1.1.1.1 ESTIMATION DES EMISSIONS ATMOSPHERIQUES DE PLOMB POUR LA COMPARAISON DES PLOMBEMIES MESUREES EN 2002 AVEC LES PLOMBEMIES MODELISEES

Pour les émissions canalisées, les moyennes des émissions mensuelles ont été calculées sur trois périodes pour définir une valeur minimale, une valeur maximale et une valeur modale :

- la valeur modale correspond aux émissions moyennes sur les douze mois précédents la campagne de dépistage ;
- la valeur minimale correspond aux émissions moyennes calculées d'avril à juin 2002, c'est à dire du début de la période d'exposition des végétaux cultivés en

2002 jusqu'à la date de la campagne de dépistage de la plombémie. Ces conditions d'émissions conduisent à focaliser la modélisation des expositions sur les deux mois précédemment la campagne de dépistage, période pendant laquelle les habitants étaient susceptibles de consommer les premiers légumes-feuilles de 2002 provenant de leur jardin ;

- la valeur maximale correspond aux émissions moyennes calculées d'Avril 2001 à juin 2002, permettant ainsi de prendre en compte la période d'exposition de toutes les catégories de fruits et légumes issus de la dernière récolte avant la campagne de plombémie.

Quant aux émissions diffuses, elles ont été estimées à partir de facteurs d'émissions proposés par Durif (INERIS, 2001 b) sur des installations françaises. Ces facteurs d'émissions se rapportent aux activités intrinsèques au procédé de la seconde fusion du plomb, mais aussi à l'ensemble des activités sur le site industriel (stockage des scories, réenvol des poussières à partir des surfaces extérieures). Une valeur minimale, une valeur modale et une valeur maximale du flux d'émissions diffuses ont été estimées :

- la valeur modale repose sur une production d'environ 21000 tonnes de plomb par an (moyenne entre la production de 2001 et celle estimée en 2002, compte tenu de la réduction des heures d'activité) et la prise en compte d'émissions diffuses liés au cassage, au chargement des fours et au réenvol des poussières à partir des surfaces. Le facteur d'émission lié aux réenvols à partir des surfaces proposé dans le rapport INERIS (2001 b), est divisé par deux pour tenir compte des mesures de réduction des émissions mises en place chez Métal-Blanc (lavage des roues des camions avant sortie du site, lavage des surfaces goudronnées tous les jours) ;
- la valeur minimale repose sur les mêmes hypothèses que la valeur modale, mais le facteur d'émission lié aux envols de poussières proposé est divisé par quatre, considérant ainsi un effet plus important des procédures de lavage sur la réduction des émissions diffuses ;
- la valeur maximale repose sur une production de 25000 tonnes de plomb (production annoncée par l'industriel avant 2002) et la prise en compte d'émissions diffuses liés au cassage, au chargement des fours, au stockage des scories et au réenvol des poussières à partir des surfaces. Les facteurs d'émissions proposés par dans le rapport cité ci-dessus sont pris tels quels, considérant les procédures de couverture des scories et de lavage, appliquées chez Métal-Blanc, comme étant inefficaces.

Les valeurs minimale, modale et maximale ainsi obtenues pour le flux mensuel d'émissions diffuses sont respectivement égales à 20, 30 et 60 kg (valeurs arrondies au premier chiffre significatif). Ces valeurs sont en accord avec les résultats des essais de modélisation inverse (cf. annexe 4). Les estimations pour le flux mensuel d'émissions diffuses de plomb étaient comprises entre 25 et 73 kg selon les différentes hypothèses de calcul testées, pour les mois d'octobre et novembre 2005 (mois où les émissions canalisées étaient supérieures à la moyenne calculée entre juillet 2001 et juin 2002). Un autre calcul basé sur la concentration dans l'air intérieur, le volume du bâtiment et le taux de renouvellement d'air montre que le flux diffus serait de l'ordre de 34 kg/mois si la concentration dans l'air était égale à la valeur limite réglementaire et si le taux

renouvellement d'air était de 10 par heure. L'industriel reconnaissant que la valeur limite de plomb dans l'air intérieur n'est pas respectée, le flux d'émission diffuse peut atteindre et dépasser cette dernière estimation.

Les valeurs minimales, modales et maximales estimées pour les flux d'émissions canalisées et diffuses ont été sommées. Une distribution triangulaire a été définie représenter le flux total de plomb émis dans l'air par jour.

Tableau 49 : Distribution utilisée pour représenter le flux total de plomb émis dans l'atmosphère par jour pour l'estimation des plombémies en 2002

Distribution triangulaire	
Paramètres de la distribution	Valeurs (g/j)
Minimum	750
Mode	1200
Maximum	2800

3.1.1.1.2 ESTIMATION DES EMISSIONS ATMOSPHERIQUES DE PLOMB POUR LA COMPARAISON DES CONCENTRATIONS MESUREES DANS LES VEGETAUX DE 2002 A 2005 AVEC LES CONCENTRATIONS MODELISEES

Des fruits et des légumes sont prélevés chaque année au mois de juillet chez les particuliers par la société GSC (GSC 2000, 2002 a, 2002 b, 2004, 2005).

Le flux canalisé moyen entre Avril et Juillet, pour les années 2002 à 2005, présentant une variabilité bien inférieure à l'incertitude liée au flux diffus, a été estimé à partir de la moyenne des flux canalisés mesurés entre Avril et Juillet durant ces quatre années.

Pour le flux diffus, comme précédemment, une valeur minimale, une valeur modale et une valeur maximale ont été définies :

- la valeur modale repose sur une production d'environ 17000 tonnes de plomb par an (et la prise en compte d'émissions diffuses liées aux cassage, au chargement des fours et au réenvol des poussières à partir des surfaces. Les facteurs d'émission proposés par Durif (INERIS, 2001 b) sont divisés par deux pour tenir compte des mesures de réduction des émissions mises en place chez Métal-Blanc (mise en dépression du bâtiment⁶, lavage des roues des camions avant sortie du site, lavage des surfaces goudronnées tous les jours) ;
- la valeur minimale repose sur les mêmes hypothèses que la valeur modale, mais les facteurs d'émission proposés sont divisés par quatre ;
- la valeur maximale repose sur les mêmes hypothèses que la valeur modale. Mais, les facteurs d'émissions proposés dans le rapport INERIS (2001 b) sont pris tels quels, considérant la mise en dépression du bâtiment et les procédures de lavage appliquées comme étant inefficaces.

Les valeurs minimale, modale et maximale ainsi obtenues pour le flux mensuel d'émissions diffuses sont respectivement égales à 10, 20 et 40 kg (valeurs arrondies au premier chiffre significatif).

6 : Vérification par test aux fumigènes réalisée en 2003 par la société SMC2

Les valeurs minimales, modales et maximales estimées pour les flux d'émissions canalisées et diffuses ont été sommées. Une distribution triangulaire a été définie pour représenter le flux total de plomb émis dans l'air par jour.

Tableau 50 : Distribution utilisée pour représenter le flux total de plomb émis dans l'atmosphère par jour pour l'estimation des concentrations de plomb dans les végétaux prélevés entre 2002 et 2005

Distribution triangulaire	
Paramètres de la distribution	Valeurs (g/j)
Minimum	450
Mode	780
Maximum	1450

3.1.1.2 LES CONCENTRATIONS DANS LE SOL

Une distribution lognormale de moyenne arithmétique 261 et d'écart type 249 mg/kg a été utilisée pour la couche de sol racinaire après ajustement graphique selon la méthode de la droite de Henry sur les valeurs mesurées (coefficient de détermination de la droite de régression $R^2 = 0,97$).

Les résultats présentés pour la plombémie et pour la contamination des végétaux sont basés sur l'utilisation de cette distribution. La prise en compte de l'ensemble des échantillons prélevés entre 0 et 20 cm sur la commune ou des seuls échantillons prélevés dans les jardins où les échantillons de végétaux ont effectivement été collectés change peu les résultats obtenus.

3.1.1.3 LES CONCENTRATIONS DANS L'AIR

Elles sont calculées par le modèle à partir des deux termes sources, que sont les flux d'émissions dans l'air et les concentrations dans les sols.

3.1.2 MODELE B

3.1.2.1 LES DEPOTS ATMOSPHERIQUES

3.1.2.1.1 ESTIMATION DES DEPOTS DE PLOMB AU SOL POUR LA COMPARAISON DES PLOMBEMIES MESUREES EN 2002 AVEC LES PLOMBEMIES MODELISEES

Le dépôt au sol est estimé grâce au modèle statistique (cf. annexe 4).

Les émissions sont très variables dans le temps, en particulier entre 2001 et 2002 (compte-tenu notamment de l'évolution des conditions de production de l'usine à cette époque). Aussi, pour le calcul des plombémies, les dépôts ont été estimés sur quatre périodes pour tenir compte au mieux de la contamination des différents types de végétaux consommés avant la campagne de plombémie.

Les dépôts ont été estimés à partir :

- des données météorologiques et d'émissions de mars à octobre 2001, pour estimer les dépôts sur les végétaux récoltés de mai à octobre 2001,
- des données météorologiques et d'émissions de septembre 2001 à avril 2002, pour estimer les dépôts sur les légumes-feuilles récoltés de novembre à avril 2002,

- des données météorologiques et d'émissions de mars à juin 2002, pour estimer les dépôts sur les légumes-feuilles récoltés de mai à juin 2002 (jusqu'à la date des prélèvements sanguins),
- des données d'émission rapportées de janvier 2001 à juin 2001 (jusqu'à l'arrêt de l'installation d'assainissement des scories) et des données météorologiques de janvier 2001 à décembre 2002 (période pour laquelle les données météorologiques sont complètes), ces données étant supposées représentatives des conditions de dépôts avant mars 2001.

Les dépôts ont été calculés pour les différentes zones d'habitation supposées des enfants. Pour chacune de ces zones représentées par un polygone, le dépôt a été calculé au centre. En effet, des tests réalisés sur plusieurs polygones ont montré que la moyenne calculée à partir des dépôts estimés en chacun des sommets était très proche du dépôt estimé au centre du polygone (la différence de valeurs est négligeable par rapport à l'incertitude attachée au modèle statistique de dépôts).

3.1.2.1.2 ESTIMATION DES DEPOTS DE PLOMB AU SOL POUR LA COMPARAISON DES CONCENTRATIONS MESUREES DANS LES VEGETAUX DE 2002 A 2005 AVEC LES CONCENTRATIONS MODELISEES

Pour la comparaison des teneurs en plomb mesurées dans les échantillons de végétaux prélevés de 2002 à 2005 avec les teneurs modélisées, les dépôts ont été calculés à l'aide du même modèle statistique, en prenant en compte pour chaque échantillon :

- la distance entre le site industriel et le jardin dont l'échantillon est issu,
- les émissions et la fréquence à laquelle le vent a soufflé du site vers le jardin pendant la période d'exposition de la plante considérée. Cette période correspond à la durée entre la germination, le repiquage ou la fructification (selon l'échantillon considéré) et la collecte des échantillons. Elle est estimée à une ou deux semaines près en fonction des informations fournies par le jardinier.

3.1.2.2 LES CONCENTRATIONS DANS LE SOL

3.1.2.2.1 ESTIMATION DES CONCENTRATIONS DANS LES SOLS POUR LA COMPARAISON DES PLOMBEMIES MESUREES EN 2002 AVEC LES PLOMBEMIES MODELISEES

Les concentrations moyennes dans les sols, sur chacun des polygones correspondant aux zones d'habitation supposées des enfants, ont été estimées par méthode géostatistique. Des simulations réalisées par la méthode dite des « bandes tournantes » ont permis d'obtenir des distributions de la concentration moyenne de plomb dans le sol superficiel et dans la couche de sol comprise entre 0 et 20 cm de profondeur pour ces parcelles (cf. annexe 2).

3.1.2.2.2 ESTIMATION DES CONCENTRATIONS DANS LES SOLS POUR LA COMPARAISON DES CONCENTRATIONS MESUREES DANS LES VEGETAUX DE 2002 A 2005 AVEC LES CONCENTRATIONS MODELISEES

Les concentrations prises en compte sont celles mesurées dans les échantillons de sol prélevés entre 0 et 20 cm dans les jardins correspondant aux échantillons de plantes.

Dans chaque cas, une distribution normale centrée sur la valeur mesurée, avec un écart-type défini à partir d'un coefficient de variation de 15% a été attribuée à la concentration dans le sol.

3.1.2.3 LES CONCENTRATIONS DANS L'AIR

Pour comparer les plombémies mesurées aux plombémies modélisées, la concentration moyenne mensuelle de plomb, mesurée dans l'air par le Partisol implanté sur la commune, a été affectée à chaque enfant, mois après mois, de 0 jusqu'à l'âge auquel il a subi le dépistage de plombémie,

Dans la mesure où les calculs de comparaison réalisés sur les chaînes de modélisation ont montré que l'incertitude sur les concentrations atmosphériques contribuait de manière négligeable à la variation du niveau d'exposition, et pour ne pas démultiplier le nombre de distributions à gérer, il n'a pas été affecté de distributions statistiques aux concentrations mensuelles mesurées, dans cet exercice.

3.2 PARAMETRES DU PLOMB

3.2.1 MODELE A

Les distributions par défaut fournies par CalTOX ont été utilisées, sauf celle du coefficient de partage particules du sol-eau du sol, qui n'est pas adéquate⁷ (moyenne égale à 500000 l/kg). La distribution utilisée pour le cas type présentant une très grande variabilité (écart-type géométrique de K_d égal à 15,8) a été remplacée par une distribution basée sur les données de l'Office of Air and Radiation (US EPA, 1999 d) et prenant en compte le pH mesurés dans les sols des jardins de Bourg-Fidèle (cf. article 1, section B du corps du rapport).

Tableau 51 : Distribution définie pour K_d , à partir des données de l'Office of Air and Radiation (US EPA, 1999 d) et du pH des sols analysés à Bourg-Fidèle

Distribution triangulaire	
Paramètres de la distribution	Valeurs (l/kg)
Minimum	150
Mode	1731
Maximum	23279

7 : Elément confirmé par les concepteurs de CalTOX

3.2.2 MODELE B

Les distributions utilisées sont celles définies dans le chapitre 2.4.2.

Remarque : le coefficient de partage particules-eau du sol (K_d) n'est pas utilisé pour les estimations réalisées à l'aide du modèle B.

3.3 PARAMETRES ENVIRONNEMENTAUX

3.3.1 MODELE A

Les distributions de CalTOX fournies par défaut ont été utilisées, sauf celles relatives à la surface de la zone d'étude, à la pluviométrie, à la vitesse du vent, à la température et à la hauteur de la couche de sol racinaire. Pour les quatre premiers paramètres, les moyennes ont été modifiées pour être représentatives du site et de la période étudiés. Quant à la hauteur de la couche de sol racinaire, elle a été modifiée, afin d'être en cohérence avec les mesures réalisées dans les sols de jardins. La distribution définie au paragraphe 2.2.1.1 a été utilisée.

3.3.2 MODELE B

Les paramètres du modèle multimedia INERIS utilisés dans cet exercice sont, pour l'essentiel, ceux caractérisant les végétaux.

Les distributions utilisées sont celles définies dans le chapitre 2.2.2.

Toutefois, la comparaison des teneurs en plomb mesurées dans les végétaux collectés entre 2002 et 2005 avec celles modélisées a été menée en utilisant les informations spécifiques à chaque échantillon sur sa durée d'exposition et sa teneur en matière sèche.

Une distribution triangulaire a été définie pour la durée d'exposition⁸ à partir de l'information fournie par le jardinier avec pour valeur modale le temps passé entre la germination, le repiquage ou la fructification (selon la nature de l'échantillon) et la collecte de l'échantillon, le minimum et le maximum correspondant à cette durée plus ou moins quinze jours.

Pour la teneur en matière sèche, une distribution triangulaire a également été définie avec pour valeur modale la valeur mesurée en laboratoire, le minimum et le maximum correspondant à cette valeur plus ou moins 10%.

3.4 PARAMETRES D'EXPOSITION

3.4.1 QUANTITE DE SOL INGERE

Pour la comparaison des plombémies modélisées avec celles mesurées chez les enfants de Bourg-Fidèle, des calculs préliminaires réalisés en utilisant la distribution de Thompson *et al.* (dont les résultats ne sont pas fournis dans ce rapport), montraient une sous-estimation des plombémies. Cette distribution est caractérisée par une médiane et une moyenne respectivement égales à 62 et 86

⁸ : Dans ce cas, la durée d'exposition remplace le paramètre « durée de croissance » dans le modèle.

mg de sol ingérés par jour. IEUBK ayant été testé et « calé » par l'US EPA avec une quantité de 135 mg/j, il a été décidé de remplacer la distribution de Thompson *et al.*, utilisée dans le travail de comparaison des chaînes de modélisation, par la distribution cumulée proposée dans ISE et centrée sur 135 mg/j⁹. Cette distribution est la suivante:

Tableau 52 : Distribution utilisée pour la quantité de sol ingéré (en mg/j) pour la comparaison des plombémies modélisées par rapport aux plombémies mesurées

Distribution cumulée	
Percentiles	Valeurs
perc 10	40
perc 25	100
perc. 50	135
perc. 75	160
perc. 90	180
perc. 100	200

3.4.2 TAUX D'AUTOCONSUMMATION

Cet exercice de comparaison s'appuie sur les résultats de la campagne de dépistage de plombémie de 2002. Cette campagne comportait un questionnaire d'enquête auprès de chaque enfant testé. Ce questionnaire visait notamment à relever quel était le niveau de consommation par l'enfant :

- de fruits produits à Bourg-Fidèle, en hiver (d'octobre à avril) d'une part et en été (de mai à septembre) d'autre part,
- des légumes produits à Bourg-Fidèle, en hiver d'une part et en été d'autre part,

Cinq niveaux de consommation étaient proposés : nulle, moins d'un quart de la consommation totale, entre un quart et la moitié, entre la moitié et les trois quarts, plus des trois quarts de cette consommation.

Dans le cas du modèle B, pour chaque enfant, des distributions uniformes ont été attribuées aux taux d'autoconsommation de fruits et de légumes, en distinguant les deux saisons. Les taux d'autoconsommation ont été définis selon l'approche présentée dans le tableau suivant, à partir des données personnelles de chaque enfant.

Tableau 53 : Distributions utilisées pour les taux d'autoconsommation de chaque enfant

Niveaux de consommations fournis par l'enquête	nulle	moins de ¼	de ¼ à ½	de ½ à ¾	plus de ¾
distribution statistique	-	U (0 ; 0,25)	U (0,25 ; 0,5)	U (0,5 ; 0,75)	U (0,75 ; 1)

Pour le modèle A, les taux d'autoconsommation estivaux et hivernaux ont été moyennés. Deux distributions empiriques, l'une pour les fruits, l'autre pour les

⁹ : ISE propose également une distribution lognormale ayant pour moyenne 135 mg/j. Mais elle n'a pas été reprise pour cette étude, car la valeur de l'écart-type utilisé (20 mg/j) est visiblement trop faible pour représenter l'incertitude et la variabilité liées à la définition de ce paramètre.

légumes ont alors été construites à partir des taux d'autoconsommation annuels de chaque enfant.

Remarque : les aliments d'origine animale produits sur Bourg-Fidèle ne sont pas considérés dans cette enquête, très peu d'agriculteurs existant sur la commune. L'autoconsommation de ces produits est donc considérée comme nulle dans l'exercice de comparaison des plombémies.

3.4.3 EXPOSITION UBIQUITAIRE PAR L'ALIMENTATION

Dans le cadre de l'exercice de comparaison des plombémies modélisées par rapport à celles mesurées, contrairement au travail effectué sur le cas type, les concentrations de plomb estimées dans les végétaux, à partir des concentrations mesurées dans le sol, prennent en compte l'impact de la pollution ubiquitaire dans les sols (la concentration mesurée dans les sols intégrant à la fois l'apport lié à Métal-Blanc au fil des années et l'apport lié au fond géochimique). Aussi pour éviter de comptabiliser deux fois la contribution du bruit de fond du plomb à l'exposition par consommation de végétaux (dans la dose d'exposition ubiquitaire issue de l'alimentation d'une part et par le calcul des concentrations dans les végétaux exposés au bruit de fond du plomb dans l'air et dans le sol d'autre part), le pourcentage de contribution des végétaux à l'exposition ubiquitaire a été calculé (à partir des informations de l'étude de l'alimentation totale française, INRA, 2004). La dose correspondant à ce pourcentage, pondérée par le taux d'autoconsommation de fruits et légumes de chaque enfant, a été retranchée de la dose d'exposition ubiquitaire issue de l'alimentation.

4 REFERENCES

APRIFEL (Agence fruits et légumes frais), Les fiches nutritionnelles par produit, <http://www.aprifel.com/fiches,produits,liste.php>

Baize D., Deslais W., Saby N., Teneurs en huit éléments en traces (Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Se, Zn) dans les sols agricoles en France. Résultats d'une collecte de données à l'échelon national. Rapport final simplifié. ADEME, Angers, Convention 0375 CD0035, www.gissol.fr/programme/bdetm/bdetm.php

Baes C., Environmental transport and monitoring. Prediction of radionuclide Kd values from soil-plant concentrations ratios." Trans. Amer. Nucl. Soc. 41, 1982

Baes C., Sharp A., Sjoeren A., Shor R., A review and analysis of parameters for assessing transport of environmentally released radionuclides through agriculture, Oak Ridge National Laboratory, 1984

Benslimane F., Méthodologie d'étude et modélisation du transport de polluants organiques en milieux poreux naturels : application à l'étude de deux cas de pollutions issues de l'industrie du bois, Thèse, No : 97 INPL 081N

Bertrand J., Lutrick M., et al, Heavy residues in tissues, animal performance and carcasses quality with beef steers grazing Pensacola bahiagrass pastures treated with liquid digested sludge, Journal of Animal science 53, 1981

Boggio, Grossiord, Guyon, Fuchs, Fantino, Consommation alimentaire des nourrissons et des enfants en bas âge en France en 1997, Archives Pédiatrique, 6, 740-747, 1999

Boon D., Soltanpour P., Lead, Cadmium, and zinc contamination of Aspen garden soils and vegetation, Journal of Environmental Quality 21, 1992

Boyer, K., Jones J, Linscott D., Wright S., Stroube W., Cunningham W., Trace elements levels in tissues from cattle fed a sewage sludge-amended diet, Journal of toxicology and Environmental health 8, 1981

Butcher B., Davidoff D., Amacher C., Hinz C., Iskandar K., Selim H., Correlation of Freundlich Kd and n retention parameters with soils and elements." Soil Science 148, 1989

Calabrese E., Stanek K., Resolving intertracer inconsistencies in soil ingestion estimates, Environmental health perspectives, Vol. 103, n°5, 1995

Calabrese E., Stanek K., Pekow P., Barnes R., Soil ingestion estimates for children residing on a Superfund site, Ecotoxicology and environmental safety, 36, 1997

Carlson, R., Roolfe G., Growth of rye grass and fescue as affected by lead-cadmium-fertilizer interaction, Journal of Environmental Quality 8, 1979

CERC (Cambridge Environmental Research Consultants), ADMS 3. User Guide. Sept 2001

Chamberlain A., Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation, Atmospheric environment, 4, 1970

Cobb G., Sands K., Waters M., Wixson B., Dorward-King E, Accumulation of heavy metals by vegetables grown in mine wastes, Environmental toxicology and chemistry 19, 2000

Davies B., Conway D., Holt S., Lead pollution of London soils: a potential restriction on their use for growing vegetables, Journal of agricultural science, 93, 1979

DDASS des Ardennes, Enquête environnementale saturnisme, Rapport d'enquête du 30 Juillet 1998 réalisée dans deux bâtiments de l'école

DDASS des Ardennes, Saturnisme à Bourg-Fidèle – Prélèvements de poussières, 1999

Dinius D., Brinsfield T., Williams E., Journal of Animal Science, 37, 1973

Dorn C., Pierce J. Chase G., Philips P., in Substances in environmental health, 1973

Dufour A., Données sur les régimes alimentaires pour l'étude "Conséquences de l'accident de Tchernobyl", AFSSA-DERNS-Observatoire des consommations alimentaires, 2000

Durrieu, Cifroy, Garnier, Chemosphere, Nov;65(8), 2006

ENSP (Ecole Nationale de Santé Publique), Cours de Ressources en eaux, formation Ingénieur du Génie Sanitaire, années 1993-1994

ECETOC (European Centre for Ecotoxicology and Toxicology of Chemicals), Technical report n°40, Hazard assessment of chemical contaminants in soil, 1992

European Commission, Technical Guidance Document on risk assessment of substances following european regulations and directives, Second edition, 2003

FNSEA (Fédération nationale des syndicats d'exploitants agricoles), <http://www.fermes-ouvertes.fnsea.fr/animaux/porcs2.htm>

Glorennec P., Aide à la décision d'un dépistage systématique du saturnisme infantile autour des sites industriels en France, Mémoire de thèse, Université de Rennes, Faculté de médecine, 2006

GCNC, Groupe Chimique Nord-Cotentin, Impact des rejets chimiques, Vol. 2, annexe 4 : Bilan des informations disponibles sur les paramètres agronomiques pour le groupe radioécologique Nord-Cotentin, 2002

GRNC (Groupe Radioécologique Nord-Cotentin), Analyse de sensibilité et d'incertitude sur le risque de leucémie attribuable aux installations nucléaires du Nord-Cotentin, annexe 1 : Distributions de probabilité des paramètres, 2002

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Note au sujet des résultats d'analyse de végétaux prélevés dans le voisinage de l'usine Métal Blanc à Bourg-Fidèle, 2000

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements du 17 Juillet 2001, 2002 a

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, campagne 2002 b

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements du 16 Juillet 2003, 2004

GSC (Gestion des sites et des sols contaminés), Prost R., Suivi de la qualité des sols et des végétaux autour de l'usine Métal Blanc a Bourg-Fidèle, prélèvements 2004, 2005

Houpert P., Mehennaoui S., Federspiel B., Milhaud G., Cd and Pb elimination through milk in the ewe, contaminated soils, 15-19: 317-324, 1995

IAEA (International Atomic Energy Agency), Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments, Technical reports series n°364, 1994

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Hulot C., Lévêque S., Méthode de calcul des valeurs de constat d'impact dans les sols, DRC-01-25587/DESP-R01, 2001 a

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Durif M., Evaluation d'une méthode de quantification des émissions diffuses, Application aux cas des industries de seconde fusion du plomb, Rapport d'avancement, DRC-01-25585-AIRE-n°109-Mdu, 2001 b

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Malherbe L., Modélisation des dépôts en champs local, Note de synthèse, DRC-03-45937-MECO/LMa, 2003

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Paramètres physico-chimiques et coefficients de transfert des dioxines pour l'évaluation des risques, 2004, DRC-03-45959/ERSA-n°272

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Impact des incertitudes liées aux coefficients de transfert dans les évaluations de risque sanitaire, DRC/ERSA/RBn, 2005, 67645/204

INERIS (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques), Bonnard R., Etude d'intercomparaison de modèles multimédia,, DRC/ERSA/RBn, 2006, 45959/25

INRA (Institut National de Recherche Agronomique), Baize D., Information sur les éléments traces dans les sols en France, état au 24 août, 2004, <http://etm.orleans.inra.fr/index.html>

INRA (Institut National de Recherche Agronomique), AFSSA (Agence Française de Sécurité Sanitaire des Aliments), Leblanc J.C., Guerin T., Noel L., Volatier J. L., Verger P. , Etude de l'alimentation française totale, 2004

INSEE (Institut National de la Statistique et des Etudes Economiques), Bertrand, Consommation et lieux d'achat des produits alimentaires en 1991

Institut National de Santé Publique, Goulet L., Recension des écrits sur la contamination du lait maternel par des substances chimiques présentes en milieu de travail, 2004

IPSN (Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire), Rommens, Etude bibliographique et choix des données par défaut pour les logiciels de calcul des impacts dosimétriques, Note technique SEGR/SAER/97 n°25

IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire), Beaugelin-Sellier, Adaptation du modèle de transfert GT3-GRNC dans un écosystème agricole aux polluants inorganiques non radioactifs, Paramètres de transfert, DPRE/SERLAB/01

- Jacquet A, Quantité de sol ingéré recommandée pour un enfant : un choix trop conservateur ?, Thèse de doctorat en pharmacie, Université Paris V, 2007
- Johnson D, Kienholtz E, Baxter J., Heavy metal retention in tissues of cattle fed high Cd sewage sludge, *Journal of animal science*, 52, n°1, 1981
- Juste C. Chassin P., Gomez A., Linières M., Mocquot B., Les micropolluants métalliques dans les boues résiduelles de stations d'épuration urbaines, Collection Valorisation agricole des boues d'épuration, INRA, ADEME, 1995
- King, L. D, Retention of Metals by Several Soils of the Southeastern United States." *Journal of Environmental Quality* 17,no. 2: 239-246, 1988
- Kostecki P., Calabrese E., *Petroleum Contaminated Soils*, Volume 3, Lewis Publisher, 1990
- Larousse agricole, Librairie agricole, ISBN 2 03 514301 2, 1981
- LECES, Caractérisation de l'air ambiant dans l'environnement proche de l'usine de Metal Blanc sur le site de Bourg Fidèle, RC/L 5512, 2000
- Liu, Z., Lead poisoning combined with cadmium in sheep and horses in the vicinity of non-ferrous metal smelters, *The Science of the Total Environment* 309, 2003
- Lynch G., Cornell D., Smith D., in *Trace element metabolisms in animals*, Vol. 2, 1974
- Maddaloni M., Lolocono N., Manton W., Blum C., Drexler J., Graziano J., Bioavailability of soilborne lead in adults, by stable isotope dilution." *Environmental health perspectives* 106, supplement 6, 1998
- MAPINFO Corporation, MapInfo Professional 8.5, 2006
- McKone T., Uncertainty and variability in human exposures to soil contaminants through home-grown food : a Monte Carlo assessment, *Risk analysis*, Vol. 14, n°4, 1994
- Mehennaoui S., Charles E., Joseph-Enriquez B., Clauw M., Milhaud G., Indicators of lead, Zn and Cd exposure of cattle : II Controlled feeding and recovery, *Vet Hum Toxicology* 30(6), 1988
- Milhaud G., Mehennaoui S., Indicators of lead, Zn and Cd exposure in cattle : I Results in a polluted area, *Vet Hum Toxicology* (30), 1988.
- Ministère de l'Ecologie du Développement Durable, Bilan de la qualité de l'air en France en 2006, <http://www.bulldair.org/Documents/bilanQaMedd.pdf>
- Nelmes A., Buxton R., Fairweather F., Martin A., The implication of the transfer of trace metals from sewage sludge to man, In *Trace substances in environmental health*, VIII, Proceedings of the 8th annual conference held in Columbia, June 11-13 1974
- Ng, C., Colsher C., Thompson S., Transfer coefficients for assessing the dose from radionuclides in meat and eggs, 1982
- Ponserre V., Amélioration de la modélisation des transferts du plomb dans le sol et la chaîne alimentaire terrestre, dans les évaluations de risques sanitaires, rapport de stage INERIS, 2006

Preziosi P., Galan P., Granveau C., Deheenger M., Papoz L., Hercberg S., Consommation alimentaire d'un échantillon représentatif de la population du Val-de-Marne, I. Contribution des aliments à l'apport énergétique, revue épidémiologique et santé publique, Vol. 39, 1991

Rabinowitz M., Kopple J., Wetherill G., Effect of food intake and fasting on gastrointestinal lead absorption in humans, The American Journal of Clinical Nutrition, 33, 1980

RIVM, Bockting G., Plassche E., Struijs J., Canton J., Soil-water partition coefficients for some trace metals, report n°679101003, 1992

RIVM, Rikken M., Lijzen J., Cornelese A., Evaluation and model concepts on human exposure, Proposals for updating the most relevant exposure routes of exposure of CSOIL, report 711701022, 2001 a

RIVM, Otte P., Lijzen J., Swartjes F., Versluijs C., Evaluation and revision of the CSOIL parameter set, Proposed parameter set for human exposure modelling and deriving Intervention Value for the first series of compounds, report 711701021, 2001 b

RIVM, Versluis, C., Otte P. Accumulatie van metalen in planten, report 711701024/2001. 2001 c

Ruby M., Schoof R., Brattin W., Goldade M., Post G., Harnois M., Mosby D., Caastel S., Berti W., Carpentier M., Edwards D., Cragin D., Chappel W., Advances in evaluating the oral bioavailability of inorganics in soil for use in human health risk assessment, Environmental science & technology, Vol. 3, n°21, 1999

Sastre, Rauret, Vidal M., , Effect of the cationic composition of sorption solution on the quantification of sorption-desorption parameters of heavy metals in soil, Environmental pollution, 140, 2006

Sanson D., Hallford D., Effects of dietary sewage solids on feedlot performance, carcass characteristics, serum constituents and tissue elements of growing lambs." Journal of animal science, 1984, 59: 425-431

Schroder J., Basta N., Caastel S., Evans T., Payton M., Si J., Validation of the In Vitro Gastrointestinal (IVG) Method to estimate Relative Bioavailable Lead in contaminated soils, Journal of environmental quality, 33, 2004

Schuhmacher M., Montse M., Xifro A., Domingo J., The use of Monte-Carlo simulation techniques for risk assessment: study of a municipal waste incinerator, Chemosphere, Vol. 43, 2001

Schwartz, Quality assurance of exposure models for environmental risk assessment of substances, Doctorat thesis, Institute of Environmental Systems Research, University of Osnabrück, 2000

Sharma R., Street J., Vet. Med. Assoc, 177, 1980

Sharma R., Street J., Shupe J., Bourcier D., Journal of dairy science, 65 1982

Soltner D., Les grandes productions agricoles, Collection des sciences et techniques agricoles, 1990

Stanek E., Calabrese E., Daily estimates of soil ingestion in children, Environmental Health perspectives, Vol. 103, number 3, 1995

Stanek E., Calabrese E., Daily soil ingestion for children at Superfund site, Risk analysis, Vol. 20, n°5, 2000

Stanek E., Calabrese E., Zorn M., Soil ingestion distributions for Monte Carlo risk assessment in children, Human and ecological risk assessment, Vol. 7, n° 2, 2001 a

Stanek E., Calabrese E., Zorn M., Biasing factors for simple soil ingestion estimates in mass balance studies of soil ingestion, Human and ecological risk assessment, Vol. 7, n° 2, 2001 b

Stanley R., Mullen A., Bretthauer E., Health physics, 21, 1971

StatSoft, Statistica Kernel version 5.5, www.statsoft.com

Stevens J., Disposition of toxic metals in the agricultural food chain. 1 Steady-state bovine milk biotransfert factors, Environmental Science and Technology, 25(7), 1991

Stevens J., Disposition of toxic metals in the agricultural food chain. 2 Steady-state bovine tissue biotransfert factors, Environmental Science and Technology, 26(10), 1992

Sunassee S., Le jardin potager, PROSI Magazine, n°360, janvier 1999

Swarup D., Patra R., Naresh R., Kumar P., Shekhar P., Blood lead levels in lactating cows reared around polluted localities, transfer of lead into milk, Science of total environment 349, 2005

Swiss Agricultural Research, Mosimann, Méthodologie appliquée au pâturage, Guidelines, 2001

Syracuse Research Corporation, Integrated Stochastic Exposure (ISE) Model, ISE v1.4.1, 2003, http://www.syrres.com/eSc/ise_model.htm

University of California. CALTOX, a multimedia total exposure model for hazardous-waste sites : The Department of Toxic Substances control (DTSC), 1993

University of California. CALTOX version 2.3, Description of modifications and revisions. Berkeley : The Department of Toxic Substances control (DTSC), 1997

University of California. Final draft report : Intermedia transfer for contaminants found at hazardous wastes sites : The Department of Toxic Substances Control (DTSC), 1995

Thompson K., Burmaster D., Parametric distributions for soil ingestion by children, Risk analysis, Vol. 11, n°2, 1991

Tremel-Shaub, A., Feix I., Contamination des sols. Transferts des sols vers les plantes, EDP Sciences sols et transferts, 2005

Turkdodogan, M., Kilicel F., Heavy metals in soil, vegetables and fruits in the endemic upper gastrointestinal cancer region of Turkey, 2002

US DOe (US Department of Energy), Office of environment management, Empirical models for the uptake of inorganic chemicals from soils by plants, 1998

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Smith A., Soil-related input parameters for the biosphere model, ANL-NSB-MD-000009 Rev00, 2003 a

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Wasiolek M., Environmental transport input parameters for the biosphere model, ANL-MGR-MD-000007 REV 01, 2003 b

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Wesley W., Biosphere model report, MDL-MGR-MD-000001 Rev00, 2003 c

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Rasmuson K., Agricultural and environmental input parameters for the biosphere model, ANL-MGR-MD-000006 Rev02, 2004

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Inhalation exposure input parameters for the biosphere model, Wasiolek M., ANL-NSB-MD-000009 Rev01, 2006

US EPA (US Environmental Protection Agency), Review of the National Ambient Air Quality standards for lead exposure analysis methodology and validation. Office of Air Quality Planning and Standards. EPA-450/2-89/011, 1989

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Guidance manual for the IEUBK model for lead in children, report PB93-963510, 1994 a

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Technical support document : Parameters and equations used in the integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children (v0.99d), report PB94-963505, 1994 b

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Validation strategy for the Integrated Exposure Uptake Biokinetic model for lead in children, 1994 c

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Pollution Prevention and Toxics, Draft final report for task 2-8-1, Correspondance between the IEUBK lead model source code and technical support document : parameters and equations used in the integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children (v0.99d), Bridge Document ,1994 d

US EPA (US Environmental Protection Agency), Exposure Factor Handbook, Volume, 1 : General factors, Office of Research and Development, EPA/600/P-95/002Fa, 1997

US EPA (US Environmental Protection Agency), Guiding principles for Monte Carlo analysis, report EPA/630/R-97/001, 1997

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet : IEUBK model soil/dust ingestion rates, EPA #540-F-00-007, 1999 a

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste ,AMBROSE, R, Partition coefficients for metals in surface water, soil, and waste. Draft. 1999 b

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: IEUBK model bioavailability variable, EPA #540-F-00-006, 1999 c

US EPA, (US Environmental Protection Agency), Office of Air and Radiation, Geochemistry and Available Kd Values for Selected Inorganic Contaminants. Vol. 2, Report EPA-402-R-99-004b,. 1999 d

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: TRW recommendations for sampling and analysis of soil at lead sites, EPA #540-F-00-010, 2000

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Short sheet: Overview of the IEUBK model for lead in children, , report PB99-9635-8, 2002

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste, Human Health Risk Assessment Protocol for hazardous waste combustion facilities (HHRAP), report EPA/530/R-05-006, 2005

US EPA (US Environmental Protection Agency), Air quality criteria dor lead, Volume 1, EPA/600/R-5/144aF, 2006

US EPA (US Environmental Protection Agency), Metal workgroups, IEUBK frequently asked questons (FAQs), www.epa.gov/superfund/programs/lead/ieubkfaq.htm

Veen N., Vreman K., Transfer of Cd, Pb Hg and As from feed into various organs and tissues of fattening lambs, Journal of Agric. Sci., 1986, 34: 145-153

Volatier, Enquête INCA individuelle et nationale sur les consommations alimentaires, Editions Technique & Documentation, ISBN : 2-7430-0426-6, 2000

Vreman, K.,. Van der VEEN N., Van der Lolen E., Ruig W., Transfer of Cd, Pb Hg and As from feed into milk and various tissues of dairy cows : chemical and pathological data., J. Agric. Sci., Nederland (34), 1986

Xian X., Effect of chemical forms of cadmium, zinc and lead in polluted soils on their uptake by cabbage plants, Plant and soil 113, 1989

Zaragoza L. and Hogan K.,The integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children: independent validation and verification, Environ Health Perspect. 1998 December; 106(Suppl 6)

Zupan, M., Hudnik V., Lobnik F., Kadunc V. Accumulation of Pb, Cd and Zn from contaminated soil to various plants and evaluation of soil remediation with indicator plant (*Plantago lanceolata* L.) Contaminated soils : International conference on the biogeochemistry of trace elements, 15/05/95, Paris, France. Proceedings 85: 325-335

ANNEXE 6

ANALYSE COMPLEMENTAIRE DES NIVEAUX D'EXPOSITION CALCULES POUR LE CAS TYPE PAR LE MODELE INERIS

TABLES DES MATIERES

1	OBJET	3
2	COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS AVEC LE FLUX TOTAL D'EMISSION ET AVEC LE FLUX CANALISE AUX LIMITES D'EMISSION AUTORISEES.....	4
3	INFLUENCE DES DISTRIBUTIONS ATTRIBUEES AUX PARAMETRES D'ENTREE	7
3.1	Paramètres de transfert.....	7
3.2	Paramètres de consommations alimentaires	9
3.3	Distribution de la quantité de sol ingéré	10
3.4	Variabilité interindividuelle	11
4	CONCLUSION	12
5	REFERENCES.....	13

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Valeurs des paramètres utilisées dans ADMS pour définir les valeurs déterministes et les bornes inférieures et supérieures affectées aux dépôts.....	5
Tableau 2 : Valeurs et distributions utilisées pour la concentration dans l'air et les dépôts dans le cas d'émissions égales aux limites réglementaires	5
Tableau 3 : Doses d'exposition (enfants de 1 à 3 ans - Modèle INERIS) (mg/kg/j)	5
Tableau 4 : Niveaux de plombémie (enfants de 1 à 2 ans - Modèle INERIS) (µg/l)....	6
Tableau 5 : Distributions des coefficients de transfert issues de l'US DOe (2003) :	8
Tableau 6 : Doses et plombémie selon les distributions utilisées pour les paramètres de transfert du plomb (Modèle INERIS - flux total)	8
Tableau 7 : Dose d'exposition des enfants de 1-3 ans selon les distributions des quantités d'aliments consommés (modèle INERIS-flux total) (mg/kg/j)	10
Tableau 8 : Plombémie des enfants de 1-2 ans selon les distributions des quantités d'aliments consommés (modèle INERIS-flux total) (µg/l)	10
Tableau 9 : Dose d'exposition pour les enfants de 1-3 ans selon la distribution utilisée pour la quantité de sol ingérée (modèle INERIS-flux total) (mg/kg/j)	11
Tableau 10 : Plombémie des enfants de 1-2 ans selon la distribution utilisée pour la quantité de sol ingéré (modèle INERIS-flux total) (µg/l)	11
Tableau 11 : Plombémie des enfants de 1 à 2 ans selon le mode de prise en compte de la variabilité individuelle (modèle INERIS flux total) (µg/l)	12

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Doses d'exposition liées aux différentes voies selon les distributions utilisées pour les paramètres de transfert du plomb (Modèle INERIS - flux total).....	9
---	---

1 OBJET

Cette annexe présente les résultats de calculs complémentaires effectués dans le cadre du travail d'analyse des chaînes de modélisation sur le cas-type.

D'une part, les résultats obtenus avec le flux d'émission total pour une période représentative du fonctionnement normal de l'usine ont été comparés à ceux calculés sur la base des seuls flux canalisés maximum autorisés par l'arrêté préfectoral.

D'autre part, l'impact sur les résultats d'une modification des distributions attribuées à certains paramètres d'entrée du modèle a été testé.

2 COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS AVEC LE FLUX TOTAL D'EMISSION ET AVEC LE FLUX CANALISE AUX LIMITES D'EMISSION AUTORISEES

Pour illustrer l'importance de la prise en compte de l'ensemble du flux d'émission (flux canalisés et flux diffus) par rapport aux seuls flux canalisés, la dose d'exposition et le niveau de plombémie attendus pour des émissions aux cheminées égales aux valeurs limites fixées dans l'arrêté préfectoral (les flux d'émission pour chacune des cheminées sont présentés en annexe 1) ont été calculés.

Les résultats présentés correspondent au point du village ayant subi les dépôts les plus élevés de 2001 et 2002 (période la plus longue sur laquelle l'INERIS dispose de données météorologiques complètes), d'après la modélisation. Ce point se situe à 100 mètres au nord-est de l'usine, près de la jauge 5 (voir figure 1 de l'annexe 1).

Le calcul déterministe a été effectué en utilisant les valeurs de concentration et de dépôts fournies par ADMS, pour un diamètre de particules limité à 3 μm , et avec une température et une vitesse d'émission égales aux moyennes des valeurs reportées en sortie de chaque cheminée de 2001 à 2002.

Pour les estimations probabilistes, une distribution uniforme a été affectée au dépôt sec et au dépôt humide pour tenter de prendre en compte la variabilité des paramètres d'entrée du modèle de dispersion atmosphérique et l'incertitude attachée à ce modèle. La valeur minimale pour ces deux types de dépôts a été fixée en affectant aux paramètres pouvant avoir un impact sur le résultat (rugosité, vitesse d'émission, température d'émission, granulométrie) une valeur tendant à réduire ces dépôts, et en divisant les résultats ainsi obtenus par 2. A l'inverse, la valeur maximale a été définie en affectant aux mêmes paramètres d'entrée des valeurs tendant à augmenter les dépôts, et en multipliant par 2 les dépôts ainsi obtenus. Les experts de la modélisation de la dispersion atmosphérique de l'INERIS, jugent forte l'incertitude sur les dépôts et recommandent en effet la prise en compte d'une incertitude de 100 % sur les valeurs de dépôts modélisées (communication personnelle). Pour les concentrations atmosphériques, ils considèrent cette incertitude plus limitée et estiment la valeur vraie comprise entre +/- 50% de la valeur calculée par le modèle. Une distribution triangulaire a donc été utilisée pour représenter la concentration de plomb dans l'air au point d'étude. La valeur modale correspond à la concentration calculée en condition déterministe, la borne inférieure à 50% de la valeur calculée avec les paramètres minimisant les résultats de la modélisation et la borne supérieure a été obtenue en multipliant par 1,5 la concentration donnée par ADMS avec les valeurs de paramètres maximisant les résultats.

Tableau 1 : Valeurs des paramètres utilisées dans ADMS pour définir les valeurs déterministes et les bornes inférieures et supérieures affectées aux dépôts

Paramètres	Définition de la valeur déterministe affectée aux dépôts	Définition des bornes inférieures des dépôts	Définition des bornes supérieures des dépôts
rugosité	0,2	0,2	0,3
granulométrie	coupée à 3 μm	coupée à 3 μm	coupée à 10 μm
vitesse d'émission	valeur mensuelle moyenne relevée sur chaque cheminée	valeur mensuelle maximale relevée sur chaque cheminée	valeur mensuelle minimale relevée sur chaque cheminée
température d'émission	valeur mensuelle moyenne relevée sur chaque cheminée	valeur mensuelle maximale relevée sur chaque cheminée	valeur mensuelle minimale relevée sur chaque cheminée

Tableau 2 : Valeurs et distributions utilisées pour la concentration dans l'air et les dépôts dans le cas d'émissions égales aux limites réglementaires

	Valeur déterministe	Distribution
Concentration dans l'air à 1,8 m (mg/m^3)	$1,6 \cdot 10^{-5}$	T ($5,6 \cdot 10^{-6}$; $1,6 \cdot 10^{-5}$; $4,9 \cdot 10^{-5}$)
Dépôt sec ($\text{mg}/\text{m}^2/\text{an}$)	0,68	U (0,26 ; 11,06)
Dépôt humide ($\text{mg}/\text{m}^2/\text{an}$)	1,12	U (0,51 ; 2,72)

Les autres conditions relatives à cet essai de calcul sont identiques à celles utilisées dans le cas type (cf. chapitre 2 de l'annexe 5).

Les résultats présentés dans les tableaux ci-dessous traduisent le risque de sous-estimation engendré par la non prise en compte des flux diffus.

Tableau 3 : Doses d'exposition (enfants de 1 à 3 ans - Modèle INERIS) ($\text{mg}/\text{kg}/\text{j}$)

	flux total	flux canalisés
Valeur déterministe	$3,3 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$
Percentile correspondant	> 99	50
%> VTR	<1	-
Médiane	$8,7 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$
95 ^{ème} perc.	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$4,4 \cdot 10^{-4}$
95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc	6,9	11,9

Tableau 4 : Niveaux de plombémie (enfants de 1 à 2 ans - Modèle INERIS) (µg/l)

	flux total	flux canalisés
Valeur déterministe	93	35
Percentile correspondant	98	78
%>100 µg/l	<1	-
Médiane	44	28
95 ^{ème} perc.	78	46
95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc	2,9	2,4

La dose d'exposition attribuable à l'usine et calculée à partir de l'estimation du flux total de plomb émis est 5 (valeurs reportées au 95^{ème} percentile) à 6 (valeurs reportées au 50^{ème} percentile) fois plus élevée que celle calculée avec le flux canalisé maximum autorisé, alors même que les émissions canalisées sur la période prise en référence dans ces calculs ont toujours été inférieures aux valeurs limites d'émissions.

En termes de plombémie, la différence est moins marquée du fait de la prise en compte de l'exposition ubiquitaire dans le calcul des concentrations de plomb dans le sang. Lorsque les émissions de l'installation sont égales au flux maximal autorisé, l'exposition ubiquitaire représente en effet 75% de la dose d'exposition médiane estimée.

Lors de la prise en compte du flux canalisé maximal autorisé, l'estimation ponctuelle de la dose d'exposition est égale à la dose médiane calculée par approche probabiliste. Contrairement aux résultats obtenus dans le cadre de la comparaison des différentes chaînes de modélisation, l'estimation ponctuelle ne correspond donc pas à une valeur haute ou majorante de l'exposition. Ceci est du à la valeur déterministe affectée au dépôt sec, qui joue un rôle sensible sur la dose d'exposition. La valeur supposée la plus probable (c'est-à-dire le mode) a été utilisée comme valeur déterministe, mais cette valeur est décalée vers la gauche de la distribution définie pour le dépôt sec.

Lors de simulations déterministes, même si certains, voire de nombreux paramètres sont affectés d'une valeur majorante, il suffit donc qu'un paramètre ayant un effet particulièrement sensible sur la variable de sortie soit défini par une valeur correspondant à un percentile faible de la distribution des fréquences cumulées pour que le résultat déterministe ne soit plus majorant et ne puisse plus être considéré comme protecteur. Sauf à affecter à chaque paramètre d'entrée des valeurs effectivement majorantes, la réalisation de calculs déterministes selon l'approche actuelle visant à utiliser des valeurs majorantes pour certains paramètres et des valeurs plus « réalistes » pour d'autres conduit, par conséquent, à l'obtention de résultats dont le degré de prudence est inconnu.

3 INFLUENCE DES DISTRIBUTIONS ATTRIBUEES AUX PARAMETRES D'ENTREE

Les distributions attribuées aux paramètres peuvent influencer les résultats obtenus (Bukowski *et al.*, 1995, Hamed *et al.*, 1997, Binkowitz *et al.*, 2001). Or, selon les paramètres, la part liée au jugement d'expert dans la définition de ces distributions peut être importante. L'influence sur le résultat des distributions attribuées à trois catégories de paramètres particulièrement variables et pour lesquels la définition de distributions statistiques s'est avérée plus délicate que pour les autres (cf. annexe 5) a été testée. Il s'agit :

- des paramètres de transfert,
- des quantités d'aliments consommés par les enfants,
- des quantités de sol ingéré par les enfants.

L'utilisation d'une distribution auxiliaire de type lognormale pour prendre en compte de manière globale la variabilité interindividuelle à partir de conditions d'exposition type, telle que proposée dans le modèle IEUBK original, a également été testée et comparée à l'utilisation de distributions pour chacun des paramètres d'exposition des enfants.

3.1 PARAMETRES DE TRANSFERT

Les niveaux de risque obtenus avec le modèle INERIS ont été recalculés en remplaçant les distributions statistiques des coefficients de transfert du plomb, définies dans le chapitre 2.4 de l'annexe 5, par celles proposées dans US DOe (2003).

Les distributions présentées dans ce document ne sont pas issues d'une analyse d'articles primaires, mais ont été élaborées à partir de revues de la littérature, et de rapports recommandant des valeurs génériques de coefficients de transfert ou décrivant des modèles multimédia et leurs paramètres associés. A partir de ces données, une moyenne et un écart-type géométrique ont été calculés. Des écarts-type géométriques très larges (de l'ordre de 20) ont parfois été obtenus (coefficients de transfert vers les œufs et la viande de volaille dans le cas du plomb). Les auteurs du rapport ont alors utilisé une valeur égale à 10 à la place de l'écart-type calculé, en justifiant cette substitution par les résultats de l'analyse de Sheppard et Evenden (1996). A partir des coefficients de transfert d'une base de données, ces derniers ont en effet calculé que pour des facteurs de transfert spécifiques (même site, même sol, même plante,...), les écarts-types géométriques étaient de l'ordre de 1,5 et que pour des données génériques, ils étaient supérieurs à 3 et le plus souvent de l'ordre de 6. A partir de cette moyenne et de cet écart-type, une distribution lognormale a alors été définie. Afin d'éviter le tirage au sort de valeurs irréalistes, ces distributions ont été bornées. Les bornes inférieures et supérieures, correspondant respectivement aux percentiles 0,05 et 99,5 de la distribution lognormale, ont été définies comme suit :

borne inférieure= moyenne géométrique / (écart-type géométrique)^{2,576}

borne supérieure= moyenne géométrique * (écart-type géométrique)^{2,576}

Tableau 5 : Distributions des coefficients de transfert issues de l'US DOe (2003) :

Paramètres	Distribution lognormale (moyenne arithmétique, écart-type arithmétique, borne inférieure, borne supérieure)
Transfert sol-légumes-feuilles (kg sec/kg sec)	LN ($4,8.10^{-2}$; $1,5.10^{-1}$; $3,0.10^{-4}$; $7,7.10^{-1}$)
Transfert vers les fruits (kg sec/kg sec)	LN ($2,5.10^{-2}$; $4,4.10^{-2}$; $5,8.10^{-4}$; $2,6.10^{-1}$)
Transfert vers les grains (kg sec/kg sec)	LN ($7,2.10^{-3}$; $6,2.10^{-3}$; $8,2.10^{-4}$; $3,8.10^{-2}$)
Transfert vers les autres légumes (kg sec/kg sec)	LN ($1,7.10^{-2}$; $2,8.10^{-2}$; $5,0.10^{-4}$; $1,6.10^{-1}$)
Transfert vers le fourrage (kg sec/kg sec)	LN ($1,2.10^{-1}$; $7,9.10^{-1}$; $1,2.10^{-4}$; 2,8)
Transfert vers la viande (j/kg)	LN ($9,9.10^{-4}$; $1,2.10^{-3}$; $5,4.10^{-5}$; $7,5.10^{-3}$)
Transfert vers la viande de volaille (j/kg)	LN ($3,5.10^{-1}$; 5,0 ; $6,6.10^{-5}$; 9,3)
Transfert vers le lait (j/kg)	LN ($3,1.10^{-4}$; $4,7.10^{-4}$; $1,0.10^{-5}$; $2,9.10^{-3}$)
Transfert vers les oeufs (j/kg)	LN ($7,9.10^{-1}$; 11,2 ; $1,5.10^{-4}$; 21)

Tableau 6 : Doses et plombémie selon les distributions utilisées pour les paramètres de transfert du plomb (Modèle INERIS - flux total)

	Distributions de l'US DOe	Distributions INERIS
Doses des enfants de 1-3 ans (mg/kg/j)		
Valeur déterministe	$3,3.10^{-3}$	
Percentile correspondant	93	> 99
%> VTR	7,2	< 1
Médiane	$1,3.10^{-3}$	$8,7.10^{-4}$
95 ^{ème} perc.	$3,9.10^{-3}$	$2,4.10^{-3}$
95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc	8,2	6,9
Plombémie des enfants de 1-2 ans (µg/l)		
Valeur déterministe	93	
Percentile correspondant	92	98
%>100 µg/l	5,3	< 1
Médiane	52	44
95 ^{ème} perc.	10,0	78
95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc	3,3	2,9

Les niveaux de risque calculés avec les distributions statistiques de l'US DOe sont plus élevés. On note:

- une augmentation de 50 % de la dose médiane et de 63% du percentile 95 de cette dose,
- que la dose d'exposition est supérieure à la valeur toxicologique de référence dans 7% des cas, alors que ce pourcentage est trop faible pour être quantifié avec Crystal-Ball, avec les distributions redéfinies dans le cadre de cette étude par l'INERIS,

- que le pourcentage de plombémie supérieure à la valeur repère de 100 µg/l est égale à 5%, alors qu'il est trop faible pour être quantifié avec Crystal Ball à partir des distributions redéfinies par l'INERIS.

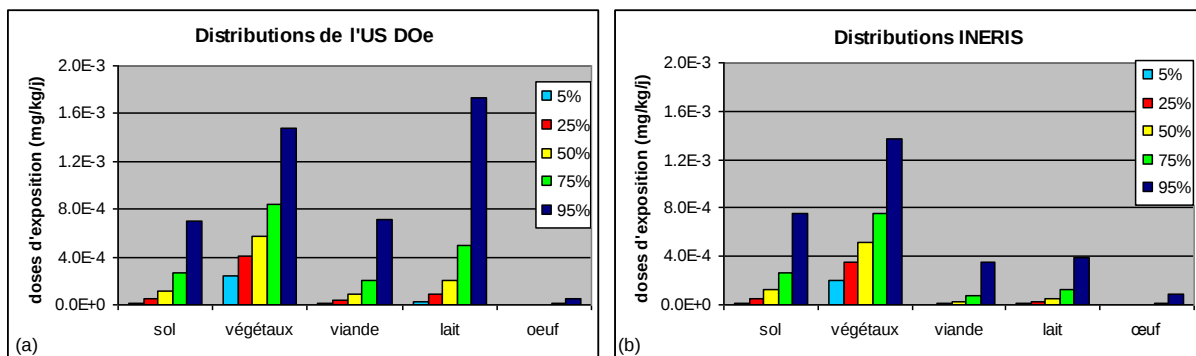


Figure 1 : Doses d'exposition liées aux différentes voies, selon les distributions utilisées pour les paramètres de transfert du plomb (Modèle INERIS - flux total)

Au niveau des premiers percentiles, les doses d'exposition obtenues avec ces deux jeux de distributions pour les différentes voies sont proches. Ensuite, les doses liées à l'ingestion de viande et de lait calculées avec les distributions de l'US DOe paraissent nettement plus importantes que celles calculées avec les distributions définies par l'INERIS. Au niveau de la médiane, avec les distributions de l'US DOe, la somme des doses liées à l'ingestion de produits animaux représente 30% de la somme de toutes les doses ingérées contre 18 % avec les distributions définies par l'INERIS. Au 95^{ème} percentile, ces pourcentages sont respectivement de 53 % avec les distributions de l'US DOe et de 30 % avec celles de l'INERIS. Dans le premier cas, l'ingestion de produits animaux devient donc la source d'exposition principale, alors que dans le second, c'est l'ingestion de végétaux qui reste prépondérante.

3.2 PARAMETRES DE CONSOMMATIONS ALIMENTAIRES

Comme indiqué dans le paragraphe 2.3.2.1, faute de données adéquates pour définir les distributions de quantités d'aliments consommés (données de consommations par individu sur une longue période), trois approches ont été comparées :

- Définition de distributions triangulaires pour chaque type d'aliments et chaque classe d'âge avec :
 - valeur la plus probable égale à la moyenne fournie par les études Alliance 7-SOFRES-CHU/Dijon (Boggio et al, 1999) pour l'alimentation des bébés et l'enquête INCA de l'AFSSA (Volatier, 2000) à partir de 3 ans,
 - valeur minimale égale à la moitié de la valeur moyenne,
 - valeur maximale égale au double de la valeur moyenne ;

La consommation de chaque aliment pour une classe d'âge donnée est par ailleurs supposée corrélée au poids corporel de cette classe d'âge avec un coefficient de 0,8, et aux quantités consommées par les individus de la classe d'âge inférieure et supérieure avec un coefficient de 0,8 ;

- Utilisation des mêmes distributions que ci-dessus, mais l'ensemble des corrélations prises en compte dans les calculs est supprimé ;

- Définition de distributions lognormales pour chaque type d'aliments et chaque classe d'âge avec une moyenne égale à la quantité consommée ramenée au poids corporel et un écart-type égal à 20% de la moyenne (mêmes types de distributions que celles proposées par McKone, 1989).

Tableau 7 : Dose d'exposition des enfants de 1-3 ans selon les distributions des quantités d'aliments consommés (modèle INERIS-flux total) (mg/kg/j)

	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Distributions triangulaires corrélées	$8,7 \cdot 10^{-4}$	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$2,4 \cdot 10^{-3}$	6,9
Distributions triangulaires non corrélées	$8,9 \cdot 10^{-4}$	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{-3}$	7,1
Distributions lognormales	$7,6 \cdot 10^{-4}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-3}$	7,0

Tableau 8 : Plombémie des enfants de 1-2 ans selon les distributions des quantités d'aliments consommés (modèle INERIS-flux total) (µg/l)

	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Distributions triangulaires corrélées	44	27	77	4,2
Distributions triangulaires non corrélées	44	28	77	4,1
Distributions lognormales	40	25	71	4,4

Il n'y a pas de différences sensibles entre les résultats des calculs menés en prenant en compte ou non les corrélations entre les distributions.

L'utilisation des distributions lognormales pour les consommations alimentaires conduit à l'obtention d'une médiane un peu plus faible, mais les différences restent très limitées (14% de différence sur la dose d'exposition, 10% sur le niveau de plombémie).

Ces hypothèses alternatives sur les distributions de consommations alimentaires, qui en terme de risque donnent des résultats proches, montrent que le manque de précision sur la définition de ces distributions ne semble pas constituer un élément critique de nature à modifier les conclusions de l'étude. Le faible rôle joué par ces paramètres est confirmé par l'analyse de sensibilité.

3.3 DISTRIBUTION DE LA QUANTITE DE SOL INGERE

Deux distributions ont été testées :

- la distribution de Thompson *et al.* (1991) : LN (85,6 ; 81,1),
- la distribution redéfinie en annexe 5 à partir de l'ensemble des éléments fournis par Stanek *et al.* (2001) pour intégrer l'incertitude de mesure et la variabilité interindividuelle.

Tableau 9 : Dose d'exposition pour les enfants de 1-3 ans selon la distribution utilisée pour la quantité de sol ingérée (modèle INERIS-flux total) (mg/kg/j)

	%> VTR	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Thompson <i>et al.</i> (1991)	< 1	$8,7 \cdot 10^{-4}$	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$2,4 \cdot 10^{-3}$	6,9
Distribution définie à partir de Stanek <i>et al.</i> (2001)	< 1	$7,5 \cdot 10^{-4}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$	6,6

Tableau 10 : Plombémie des enfants de 1-2 ans selon la distribution utilisée pour la quantité de sol ingéré (modèle INERIS-flux total) (µg/l)

	%>100 µg/l	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Thompson <i>et al.</i> (1991)	< 1	44	27	77	4,2
Distribution définie à partir de Stanek <i>et al.</i> (2001)	< 1	40	24	70	4,1

La distribution de Thompson *et al.* étant décalée et plus étendue vers la droite par rapport aux données de Stanek *et al.*, les résultats obtenus sont un peu plus élevés, mais les différences restent très faibles.

3.4 VARIABILITE INTERINDIVIDUELLE

La variabilité interindividuelle a été considérée de deux manières différentes :

- en définissant pour les **paramètres d'exposition** des distributions reflétant la variabilité interindividuelle (quantité d'aliments consommées, volumes respiratoires, taux d'absorption,...) ;
- en calculant le niveau de plombémie avec les valeurs médianes des différents paramètres d'exposition, puis en appliquant au résultat obtenu une distribution lognormale ayant une moyenne géométrique égale à 1 et un écart-type géométrique égal à 1,6. Cette approche est celle utilisée dans le modèle IEUBK original (US EPA, 1994 a, b) pour refléter la variabilité de la plombémie dans un ensemble d'enfants du même âge, exposés aux mêmes conditions environnementales. Cette valeur de 1,6 est basée sur des données spécifiques de sites miniers et de fonderies de plomb.

Remarque : Pour ce calcul, les distributions affectées aux autres paramètres du modèle (paramètres de transfert, paramètres environnementaux) ont été conservées, car les distributions des paramètres contribuant le plus à la variance du niveau de plombémie correspondent essentiellement à une incertitude d'estimation (défaut de connaissance) et non à de la variabilité interindividuelle ou spatiale.

Tableau 11 : Plombémie des enfants de 1 à 2 ans selon le mode de prise en compte de la variabilité individuelle (modèle INERIS flux total) ($\mu\text{g/l}$)

	%>100 $\mu\text{g/l}$	Médiane	5 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc.	95 ^{ème} perc./5 ^{ème} perc
Distributions pour les paramètres d'exposition variables	< 1	44	27	77	2,9
Application d'un écart-type géométrique égal à 1,6 sur le niveau de plombémie calculé	5	42	18	100	5,6

La courbe de distribution du niveau de plombémie obtenue à partir de la seconde approche (application d'une loi lognormale au niveau de plombémie calculé) est un peu plus large que celle obtenue en utilisant une distribution propre à chaque paramètre d'exposition. Le pourcentage de dépassement de la valeur de référence du plomb dans le sang est alors égal à 5, alors qu'il est non quantifiable, avec Crystal-Ball, dans la première approche.

L'application a posteriori d'une distribution lognormale sur le niveau de plombémie calculé permet d'intégrer d'autres sources de variabilité entre les enfants que celles liées aux paramètres d'entrée du modèle. Elle permet ainsi d'intégrer la variabilité correspondant aux paramètres internes de IEUBK (par exemple, le poids des différents compartiments internes modélisés, les temps de transfert entre compartiments,...). Il est donc logique d'avoir au final une distribution de la plombémie plus large avec cette approche. En revanche, même si l'US EPA (1994a) recommande de ne pas modifier la valeur de l'écart-type proposée par défaut pour représenter la variabilité, et indique que cette valeur a été définie à partir de différents sites (sites miniers et fonderies), il n'est pas sûr qu'elle soit appropriée pour le cas traité ici. L'US EPA a d'ailleurs observé que la valeur de l'écart-type tend à augmenter quand les niveaux de plombémie diminuent, du fait vraisemblablement de l'influence de plusieurs milieux sur l'exposition et non plus d'un seul milieu dans ces conditions.

4 CONCLUSION

Cette annexe montre finalement :

- l'importance de la prise en compte du flux d'émission diffuse ;
- l'importance des distributions affectées aux coefficients de transfert dans cet exercice. La prise en compte de distributions basées sur une collecte non critique de données conduirait à l'obtention d'une distribution de la dose d'exposition par ingestion de lait très incertaine et prépondérante (d'après les percentiles élevés de l'estimation), alors qu'une analyse plus approfondie permet d'obtenir des distributions moins étendues et une même voie d'exposition prépondérante (l'ingestion de végétaux) quel que soit le percentile observé ;
- le faible impact, dans cette étude, des incertitudes sur la distribution des quantités d'aliments et de sol ingérés sur les résultats de la modélisation.

5 REFERENCES

Binkowitz B., Wartenberg D., Disparity in quantitative risk assessment: a review of input distributions, Risk analysis, Fev. 21 (1), 2001

Boggio, Grossiord, Guyon, Fuchs, Fantino, Consommation alimentaire des nourrissons et des enfants en bas âge en France en 1997, Archives Pédiatrique, 6, 740-747, 1999

Bukowski J., Korn L., Wartenberg D., Correlated inputs in quantitative risk assessment : The effects of distributional shape, Risk analysis, Vol. 15, n°2, 1995

Hamed M., Bedient P., On the effect of probability distributions of input variables in public health risk assessment, Risk analysis, Vol. 17, n°1, 1997

Sheppard et Evenden, Variation in transfer factors for stochastic models soils-to-plant transfer, Health physics, 72 (5), 1997

Stanek E., Calabrese E., Zorn M., Soil ingestion distributions for Monte Carlo risk assessment in children, Human and ecological risk assessment, Vol. 7, n° 2, 2001

Thompson K., Burmaster D., Parametric distributions for soil ingestion by children, Risk analysis, Vol. 11, n°2, 1991

US DOE (US Department of Energy), Office of civilian radioactive waste management, Wasiolek M., Environmental transport input parameters for the biosphere model, ANL-MGR-MD-000007 REV 01, 2003

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Guidance manual for the IEUBK model for lead in children, report PB93-963510, 1994 a

US EPA (US Environmental Protection Agency), Office of Solid Waste and Emergency Response, Technical support document: Parameters and equations used in the integrated exposure uptake biokinetic model for lead in children (v0.99d), report PB94-963505, 1994 b

Volatier, Enquête INCA individuelle et nationale sur les consommations alimentaires, Editions Technique & Documentation, ISBN : 2-7430-0426-6, 2000