

RENNES

Ingénieur du Génie Sanitaire

Promotion 2004-2005

Pertinence de la mise en place d'une étude d'imprégnation à l'arsenic d'origine tellurique de la population lorraine

Présenté par :

Hubert Boulanger

Structure d'accueil:

DRASS de Lorraine

Référent professionnel:

Karine Théaudin

Référent pédagogique:

Bernard Junod

Remerciements

Pour leurs aides à tous, j'adresse mes remerciements à:

tous les membres du service santé environnement de la DRASS :

Karine, pour m'avoir encadré, aidé et orienté pour ce mémoire,

Annaïg, pour m'avoir encadré également pendant quelques temps, et la relecture,

Jérôme, pour ton aide, tes conseils,

Sylvie pour l'aide technique,

Stéphany, Georgette, Philippe et Francis

Je tiens aussi à vous dire à tous que l'ambiance qui règne ici a vraiment contribué à faire passer ce stage à la vitesse grand V

- Donatien, Florence, Karine, Sophie et toute l'équipe de la Cire Est pour les conseils, les remarques, le temps consacré à ce mémoire, les questions qui m'ont aidé,
- Bernard Junod de l'ENSP pour l'aide à distance,
- Marie-Reine Schmitt de la DRASS pour l'aide technique,
- Danielle Dell'Era du service statistique pour les renseignements INSEE,
- Christian Mannschott de la DDASS de Meurthe-et-Moselle, Hélène Robert et Laurence Ziegler de la DDASS de Moselle, Cécile Brouillard de la DDASS des Vosges, Céline Mahaut de la DDASS de Meuse, pour leurs contributions,
- Blandine Durendeau et Michel Aguillaume du BRGM Nancy, Blandine Clozel du BRGM Lyon,
- Pascal Lajugie de la DRIRE de Lorraine,

Et à tous ceux qui ont été là également :

- Marie-Catherine, Delphine, Claire, Sabine et Axelle
- Gaëlle, pour ta vision éclairée, tes conseils et ta présence,
- Samuel
- Aline et Géraut,
- Elisabeth et Clodie
- Aurélie, pour ton soutien et tes conseils si réfléchis...
- Châu, pour ton soutien, ta présence à distance!
- Gilles pour tout

Sommaire

INT	RODUCTION	7
1	L'ARSENIC DANS L'ENVIRONNEMENT : GENERA	LITES 9
1.1	Présentation de l'arsenic et de ses propriétés	9
1.2	Les différentes formes de l'arsenic	9
1.2	2.1 Les formes inorganiques	9
1.2	2.2 Les formes organiques	10
1.2	2.3 Toxicités des différentes formes	10
1.3	Sources d'arsenic dans l'environnement	10
1.3	3.1 Sources anthropiques	10
1.3	3.2 Sources naturelles	11
1.4	Valeurs réglementaires	11
1.4	4.1 Dans les sols : Valeur de Constat d'Impact	11
1.4	4.2 Dans l'eau	11
1.4	4.3 Législation internationale concernant l'arsenic	12
1.5	Concentrations de l'arsenic dans l'environnement	12
1.5	5.1 En milieu naturel	12
1.5	5.2 En milieu contaminé	13
1.6	Géochimie de l'arsenic et mécanismes de transfert	14
1.0	6.1 Comportement dans l'eau	14
1.0	6.2 Comportement dans les roches et dans les sols	14
1.0	Passage d'un compartiment à l'autre	14
2	ETENDUE GEOGRAPHIQUE ET NIVEAU DE LA CO	ONTAMINATION EN
ARS	SENIC DANS LES SOLS LORRAINS	16
2.1	Recueil des différentes données	16
	1.1 En terrains sédimentaires	16
	1.2 En terrains sedimentaries 1.2 En terrain granitique : cas des Vosges	19
۷٠.		
2.2	Traitement statistique des données du BRGM sur le département	nt des Vosges 20
	2.1 Recueil et hétérogénéité des données	20
2.2	2.2 Traitement des données	20

2.3	Ca	rtes de la contamination en arsenic d'origine tellurique de la Lorraine	21
2.3	.1	En contexte sédimentaire	21
2.3	.2	Cas des Vosges	23
3	EVA	LUATION DES RISQUES SANITAIRES DE L'ARSENIC D'ORIGIN	Ε
TEL	LUF	RIQUE EN LORRAINE	24
3.1	Ide	entification des dangers	24
3.1	.1	Toxico-dynamique de l'arsenic	24
3.1	.2	Effets de l'arsenic sur la santé	26
3.2	Re	lation doses réponses	28
3.2	.1	Effets aigus	28
3.2	.2	Effets chroniques	29
3.3	Es	timation des expositions de la population lorraine à l'arsenic d'origine tellurique	30
3.3	.1	Mise en évidence d'une population à risque pour la contamination par l'arsenic ?	30
3.3	.2	Voie d'exposition	30
3.3	.3	Scénarii d'exposition	34
3.3	.4	Calcul des doses journalières d'exposition	36
3.4	Ca	ractérisation du risque	37
3.4	.1	Effets non cancérigènes	37
3.4	.2	Effets cancérigènes	38
3.4	.3	Discussion des résultats	39
4	LES	DIFFERENTS BIOMARQUEURS A L'ARSENIC ET LES RESULTA	ATS
ESC	ОМ	PTES DANS LE CAS LORRAIN	40
4.1	Οι	els biomarqueurs sont des indicateurs de la contamination humaine par l'arsenic ?	40
4.1	_	L'urine	40
4.1	.2	Les cheveux	41
4.1	.3	Les ongles	41
4.2	Ré	sultats pouvant être attendus dans le cas lorrain	41
5	CON	ICLUSION : PERTINENCE D'UNE ETUDE D'IMPREGNATION A	
L'AF	RSE	NIC TELLURIQUE DE LA POPULATION LORRAINE ?	43

Liste des figures et des tableaux

Figure 1 : Différentes formes arséniées dans l'environnement
Figure 2: Valeurs limites de référence dans différentes législations internationales sur la
contamination des sols en arsenic (Lenoble, 2003 ; Minisitry of for the Environmnen
of New-Zealand, 1997)12
Figure 3: Relations entre les concentrations en arsenic dans l'eau et dans les sols
mesurées dans les vallées suisses du Val Colla, du Val d'Isone, du Val Veddasca et
du Malcantone (Schmitt, 2000 ; Pfeifer, 2002)15
Figure 4 : Schémas de la situation du bassin de Neuves-Maisons par rapport à la couche
géologique de l'Aalénien18
Figure 5 : Positionnement dans l'échelle stratigraphique des terrains riches en arsenic 19
Figure 6: Carte des communes lorraines traversées par les terrains géologiques du
Bajocien, de l'Aalénien ou du Toarcien22
Figure 7 : Communes vosgiennes recensées par le BRGM dont les teneurs en arsenic on
été mesurées23
Figure 8: Part des différents vecteurs d'exposition dans la dose journalière d'exposition
d'un enfant37
Tableau 1 : Concentrations naturelles d'arsenic dans différents sols
Tableau 2 : Recueil de données sur les contaminations en arsenic des sols lorrains 17
Tableau 3: Concentration en arsenic dans les sols des trois stations retenues dans
l'étude des polluants du bassin de Neuves-Maisons (Merlen, 2004)31
Tableau 4: Résultats et relations entre les teneurs en arsenic des sols et dans les
légumes sur les 3 sites de l'expérience (Merlen, 2004)32
Tableau 5: Estimation des apports journaliers en arsenic total fournis par l'alimentation
pour un adulte, dans différents pays (Nairaud, 2000 ; Ravault, 2004 ; INSP, 2002 ;
AFSSA, 2004)33
Tableau 6: Estimation des apports journaliers en arsenic total pour un enfant fournis par
l'alimentation, dans différents pays (AFSSA, 2004)33
Tableau 7: Exposition à l'arsenic des habitants de la province de l'Ontario
(Gouvernement de l'Ontario, 2005)34
Tableau 8 : Scénarii et paramètres humains d'exposition
Tableau 9 : Dose journalière d'exposition à l'arsenic des différents scénarii37
Tableau 10 : Quotients de danger calculés pour les différents scénarii38
Tableau 11 : Excès de risques individuels suivant les différents scénarii38
Tableau 12 : Comparaison des données environnementales et biologiques de différentes
études d'imprégnation à l'arsenic
Hubert Boulanger - Mémoire de l'École Nationale de la Santé Publique – 2005

Liste des sigles utilisés

ADMA Acide Diméthylarsonique
ADP Adénosine DiPhosphate
AMMA Acide Monométhyarsénique
ATP Adénosine TriPhosphate

ATSDR Agency for Toxic Subtances and Disease Registry

BCF Bio Concentration Factor

BRGM Bureau de Recherches Géologiques et Minières CIRC Centre International de Recherche sur le Cancer

DDASS Direction Départementale des Affaires Sanitaires et Sociales

DJE Dose Journalière d'Exposition

DRASS Direction Régionale des Affaires Sanitaires et Sociales

IARC International Agengy for Research on Cancer (équivalent du CIRC en

français)

INCA Enquête Individuelle et Nationale sur les Consommations Alimentaires

INERIS Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques INSEE Institut National de la Statistique et des Études Économiques

INSPQ Institut National de Santé Publique du Québec

InVS Institut de Veille Sanitaire

LOAEL Lowest Observed Affected Effect Level

MRL Minimal Risk Level
MS Matière Sèche

NOAEL Non Observed Affected Effect Level

OEHHA Office of Environmental Health and Hazard Assessment (Institut de Santé-

Environnement et d'Études des Risques californien)

REL Reference Exposure Level

RfD Referentiel Dose

RIVM Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (Institut national hollandais

pour la Santé publique et l'environnement)

SAM Société des aciers d'armature du béton

US EPA United States Environmental Protection Agency

UVERB Unité de Valorisation des Energies Renouvelables et de la Biomasse

VCI Valeur de Constat d'Impact

INTRODUCTION

Il existe des mots dans la langue française que l'on associe sans le vouloir à une idée particulière, ou à un souvenir. C'est le cas de l'arsenic, ce mot évoque de célèbres empoisonnements... Et comme l'a souvent montré la littérature policière responsable de cette réputation, de façon légitime, l'arsenic fait peur car c'est un poison létal pour l'homme

En terme de toxicologie, l'arsenic est effectivement un poison mais pas uniquement de façon aiguë. Une exposition chronique à l'arsenic entraîne également des conséquences graves. Et puisque la présence d'arsenic dans l'environnement peut être d'origine naturelle, il représente à ce titre un enjeu de santé publique.

Dans le monde d'aujourd'hui, il existe de nombreux exemples de contamination de populations à très grande échelle par l'arsenic. C'est le cas notamment des contaminations hydriques de certaines nappes au Bangladesh, en Inde ou à Taiwan. L'impact sanitaire de ces pollutions est énorme : au Bangladesh, c'est plus de 50 millions de personnes qui sont concernées (Bertin, 2004) car les habitants n'ont pas d'autre choix que de boire l'eau polluée en arsenic. Les maladies résultantes de cette exposition chronique par voie de contamination hydrique sont des cancers, principalement de la peau.

Bien souvent, la présence d'arsenic dans l'environnement est le résultat d'une activité anthropique due à d'anciennes activités industrielles ayant pollué de façon ponctuelle un site. Les études épidémiologiques à ce sujet sont nombreuses et concluent souvent à une contamination directe des enfants notamment, par ingestion de sols et poussières riches en arsenic (Polissar, 1990 ; Diaz-Barriga, 1991 ; Gebel, 1998).

L'Institut National de l'environnement industriel et des Risques (INERIS) établit la Valeur de Constat d'Impact (VCI) pour l'arsenic dans les sols à 37 µg/g de matière sèche (MS). Cette valeur représente la concentration au-delà de laquelle le polluant considéré représente un danger sanitaire pour les populations exposées.

Or, de façon naturelle, l'arsenic est présent dans certains sols, considérés comme non pollués historiquement. C'est ce qu'on a constaté être le cas à Viterne, commune située en Meurthe-et-Moselle et prise comme commune témoin dans une étude de contamination industrielle. Là où il ne devait pas y avoir normalement de contamination à l'arsenic, 80 % environ des concentrations trouvées sur ce site dépassaient la VCI.

S'est alors posée la question de l'existence d'un bruit de fond anormalement élevé en arsenic sur ce site et dans les sols lorrains de façon plus générale. Cette existence était en fait depuis longtemps connue de façon informelle.

L'objectif de ce mémoire est donc de répondre à l'ensemble des questions suivantes :

- ➤ Où trouve-t-on de l'arsenic dans les sols en Lorraine et peut on tenter d'expliciter cette présence ?
- À quelle concentration l'arsenic est-il présent ?
- > Sur les bases de ces données, répondre sur la pertinence de l'imprégnation de la population lorraine par l'arsenic d'origine tellurique via une évaluation des risques sanitaires.

Ces questions seront posées au fur et à mesure du déroulement du mémoire. Celui-ci présentera dans un premier temps l'arsenic et les enjeux sanitaires qu'il engendre. Dans un deuxième temps, sera examinée la contamination lorraine des sols par ce métalloïde, puis l'évaluation des risques sanitaires à l'arsenic d'origine tellurique sera menée sur la population exposée. Enfin, c'est par un avis sur la pertinence d'une étude d'imprégnation que se conclura ce mémoire.

1 L'ARSENIC DANS L'ENVIRONNEMENT : GENERALITES

1.1 Présentation de l'arsenic et de ses propriétés

L'arsenic est un élément présent naturellement dans l'environnement. C'est un élément ubiquiste, c'est-à-dire qu'on le retrouve à la fois dans l'atmosphère, les sols, les milieux aquatiques, les sédiments et les organismes vivants (Baranger, 2004).

En abondance, il constitue le 20^{ème} élément de la croûte terrestre. Il apparaît sous un aspect gris, assez cassant et possède des propriétés physiques communes avec ses éléments voisins du tableau périodique: l'azote, le phosphore et l'antimoine principalement. Son électronégativité est trop élevée pour lui donner des propriétés métalliques strictes: il appartient au groupe intermédiaire des métalloïdes. La chimie de l'arsenic est fondée sur les propriétés de ses nombreux oxydes et sur leur capacité à former des sels avec les cations. Cela engendre une grande variété de composés (Laperche, 2003).

Grâce à ses propriétés (taille, valence, électronégativité), l'arsenic est souvent associé aux dépôts de nombreux métaux ou métalloïdes (comme l'or, le mercure, le sélénium, le platine...). C'est pourquoi il a souvent été considéré comme indicateur pour la présence d'or par exemple. C'est également un élément chalcophile, c'est-à-dire qu'il se combine facilement au soufre dans les réseaux cristallins (Baranger,2004).

1.2 Les différentes formes de l'arsenic

L'arsenic existe chimiquement sous quatre valences chimiques : -3, 0, +3 et +5 mais sa forme élémentaire (0) est très peu rencontrée dans la nature. L'arsenic pentavalent est la forme stable rencontrée dans un environnement oxygéné (Ravault, 2004).

1.2.1 Les formes inorganiques

Les formes inorganiques sont les formes d'arsenic majoritaires que l'on rencontre dans l'environnement. L'arsenic entre dans la constitution de plus de 245 minéraux, répartis dans différentes familles.

Mis à part les sulfures et les arséniures, les composés minéraux les plus courants sont les combinaisons avec l'oxygène qui existent sous deux états d'oxydation principaux :

- ➢ l'arsenic pentavalent, avec les arséniates, qui représentent 60 % des minéraux arséniés (Baranger, 2004),
- l'arsenic trivalent, avec les arsénites, qui constituent 20 % de ces minéraux arséniés.

Les sulfures constituent les formes recherchées, exploitées et utilisées dans l'industrie minière. Les minéralisations primaires les plus fréquentes sont : l'arsénopyrite ou mispickel FeAsS, le réalgar AsS, l'orpiment As_2S_3 et l'émargite Cu_3AsS_4 .

Enfin, dans les sols, l'arsenic inorganique est souvent rencontré dans des minéraux appelés secondaires comme par exemple les oxydes de fer et de manganèse. En effet, le sol contient des minéraux arséniés issus directement de l'altération de la roche mère. Leur oxydation peut aboutir à la libération d'arsenic dans le milieu naturel, suivant le pH et

les conditions d'oxydoréduction du milieu environnant. L'arsenic est alors piégé par ces minéraux secondaires (Barbier, 2001 ; Laperche, 2003).

1.2.2 Les formes organiques

Il existe principalement deux composés arséniés méthylés que l'on peut retrouver dans les sols : l'acide monométhyarsonique (AMMA) et l'acide diméthylarsinique (ADMA). Les formes organiques sont l'association de la molécule d'arsenic à des chaînes

carbonées.

Leur origine dans le sol peut être soit le résultat d'une méthylation réalisée par des microorganismes animaux ou algaires, soit directement l'apport anthropique (Baranger, 2004). La Figure 1 illustre la répartition des principales formes arséniées organiques et inorganiques dans l'environnement.

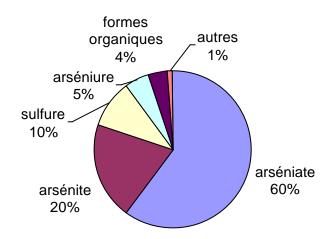


Figure 1 : Différentes formes arséniées dans l'environnement

1.2.3 Toxicités des différentes formes

L'arsenic trivalent est plus toxique que l'arsenic pentavalent, mais également plus mobile. C'est pourquoi :

- en milieu réducteur, l'arsenic trivalent est la forme la plus stable, il est donc majoritaire. Sa concentration est également amplifiée par la dissolution des minéraux secondaires comme les oxyhydroxydes de fer au sein desquels est piégé l'arsenic, la toxicité augmente donc.
- en milieu oxydant, c'est l'inverse. Il y a détoxication par piégeage de l'arsenic sur les oxyhydroxydes de fer et de manganèse, et la forme la plus stable devient la forme pentavalente, moins toxique et moins mobile : tout ceci concourt à faire diminuer la toxicité (Baranger, 2004).

1.3 Sources d'arsenic dans l'environnement

1.3.1 Sources anthropiques

Les activités humaines constituent la majorité des apports d'arsenic relâchés dans l'environnement (Laperche, 2003). Les secteurs industriels en jeu sont principalement la fonderie, la combustion du charbon, les activités d'extraction et d'exploitation de minerais. Certaines activités industrielles ont également beaucoup utilisé l'arsenic pour ses pouvoirs

de blanchiment (industrie du verre, du cuir, du papier peint), de conservation (industrie du bois) et même son pouvoir toxique (industrie pharmaceutique, chimique et agricole notamment pour la fabrication de fongicides utilisés dans les vignes et les vergers) (Laperche, 2003; Baranger, 2004; Pichard, 2005).

1.3.2 Sources naturelles

C'est le volcanisme qui constitue le principal apport naturel d'arsenic dans l'environnement par voie naturelle. L'altération des roches par dissolution de dépôts minéraux contenant de l'arsenic inorganique constitue l'autre apport principal (Laperche, 2003).

Géologiquement, il existe des couches qui contiennent naturellement de l'arsenic, à des concentrations importantes. L'arsenic libéré dans les nappes avoisinantes devient alors facilement repérable, ce qui permet d'identifier ces couches naturellement arséniées.

En Lorraine, c'est le cas par exemple de l'aquifère du grès vosgien qui alimente notamment deux nappes :

- > la nappe de la Dolomie en Dalles (concentration en arsenic de 10 à 20 μg/L),
- la nappe des Grès à Roseaux (concentration de 2 à 11 μg/L).

L'existence naturelle d'arsenic dans cet aquifère a été expliquée par la présence à sa base d'une couche organique de lignite (bois mort fossile issu de la décomposition lente de débris végétaux) riche en arsenic. La lignite est connue pour sa richesse en arsenic (Rühling, 2003). Le fait que les deux nappes soient captives (sous pression) et que le milieu soit acide a favorisé la libération de l'arsenic dans l'eau (Hamont,1989).

1.4 Valeurs réglementaires

1.4.1 Dans les sols : Valeur de Constat d'Impact

L'INERIS a fixé la VCI à 37 μ g/g de terre sèche. La VCI est calculée à partir d'une méthode de calcul itératif. La valeur retenue correspond à une concentration dans le sol du polluant telle que la dose journalière d'exposition associée à cette concentration est juste inférieure à la dose d'exposition à ne pas dépasser. Elle est calculée suivant un modèle d'exposition qui prend en compte les caractéristiques physico-chimiques du polluant et les paramètres du sol (Bonnard, 2001). Cette valeur de VCI vise à protéger les populations exposées chroniquement à l'arsenic par le sol.

Cependant, étant donné que cette valeur est fondée sur l'ingestion soluble d'arsenic dans l'eau de boisson, il est très probable qu'elle surestime le risque pour une ingestion d'arsenic dans un sol, à cause d'une biodisponibilité différente.

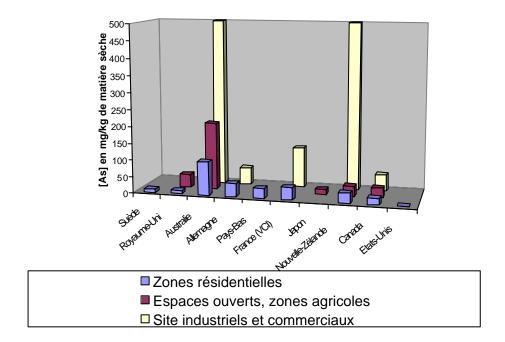
1.4.2 Dans l'eau

La limite de qualité en France dans l'eau de boisson est fixée à 10 µg/L (Code de la Santé Publique, article R 1321-2, I de l'annexe 13-1). En revanche, les limites de qualité des eaux brutes utilisées pour la production d'eau destinée à la consommation est fixée à 100 µg/L dans la mesure où le traitement pour éliminer l'arsenic est bien connu, maîtrisé et qu'il permet de garantir une eau en sortie à10 µg/L.

1.4.3 Législation internationale concernant l'arsenic

La Figure 2 résume les législations en vigueur dans plusieurs pays concernant les taux d'arsenic dans les sols.

Figure 2 : Valeurs limites de référence dans différentes législations internationales sur la contamination des sols en arsenic (Lenoble, 2003 ; Minisitry of for the Environment of New-Zealand, 1997).



Les valeurs en France se situent dans la moyenne des pays européens, de l'Amérique du Nord et du Japon. L'Australie et la Nouvelle-Zélande, pays miniers, sont les deux seuls pays qui bénéficient de réglementations plus souples sur ces contaminations.

1.5 Concentrations de l'arsenic dans l'environnement

1.5.1 En milieu naturel

A) En fonction de la nature géologique des terrains

Dans les granites, les concentrations moyennes d'arsenic sont de 50 μ g/g de matière sèche, mais dans les micaschistes (forme d'altération des granites), on peut trouver des concentrations exceptionnelles allant jusqu'à 4 000 μ g/g (Baranger, 2004). Dans les eaux de terrains granitiques, on a pu mettre en évidence une relation assez nette entre le contenu en arsenic des eaux et celui du milieu environnant (Dictor, 2004).

Dans les terrains sédimentaires, l'arsenic est notamment concentré dans les argiles (AFSSA, 2004). Cette présence d'arsenic n'est pas forcément à mettre en relation avec les couches géologiques environnantes (Dictor, 2004).

B) Dans les sols

Le Tableau 1 résume les différentes valeurs de concentrations en arsenic présentes naturellement dans les sols.

Tableau 1: Concentrations naturelles d'arsenic dans différents sols.

Etudes et localisations		Concentration en As en mg/kg MS		
Liddes et localise	moyenne	minimale	maximale	
Barbier, Fran	Parhiar France			1000
2001	· · ·		2	(uniquement dans
2001	2001			les zones à sulfure)
Laperche, France	e 2003	6	0,1	40
Dictor, 2004,	Culture	10,2		110,2
région Nord Pas-de-	Prairie	9,3		18,6
Calais	Forêt	8,7		21,9
Province de l'Ontario,	parcs urbains	17		
Canada, 2005	région rurale	11		
Province du Nouveau-Brunswick, Canada,1996		7	2	58
Goolsby, James River basin, North Dakota, USA,1987		4,15		

Ces différentes données sont cohérentes entre elles au niveau de la moyenne de la concentration en arsenic, quels que soient la date et le lieu de l'étude. Cependant, la variabilité des concentrations en arsenic est très importante. Elle peut être due aux variations de pH, à la présence ou non d'une couverture organique voire à l'état de maturation et d'évolution des sols (Häussermann, 2000).

C) L'arsenic dans l'eau

En Moselle, dans la commune de Philippsbourg, les valeurs relevées dans les eaux brutes depuis 1999 sont en moyenne autour de 50 μ g/L. Ces fortes valeurs sont dues à une anomalie géochimique. L'ouest du département des Vosges connaît aussi quelques problèmes de dépassements de cette limite, dus également à la nappe du grès vosgien qui alimente les captages.

1.5.2 En milieu contaminé

Baranger, 2004, a évalué la contamination par l'arsenic des sols, situés à proximité de sites industriels : on y retrouve une gamme de concentrations allant de 50 à 1 400 μ g/g de matière sèche.

La province de l'Ontario, 2005, a relevé des concentrations en arsenic allant jusqu'à 4 700 μg/g dans les sols avoisinants des mines.

1.6 Géochimie de l'arsenic et mécanismes de transfert

La mobilité des différentes formes arséniées est un phénomène très complexe, contrôlé par de nombreux processus chimiques et biologiques, comme des réactions d'adsorption/désorption, des mécanismes d'oxydoréduction, des réactions de dissolution/précipitation, la volatilisation et des processus microbiologiques (Baranger, 2004).

1.6.1 Comportement dans l'eau

Dans l'eau, la forme inorganique de l'arsenic est majoritaire à 90 %. Expérimentalement, cette proportion atteint 99 % dans les rivières de la vallée du Malcantone, en Suisse du Sud d'après Pfeifer, 2002.

De façon générale, on distingue alors :

- > dans les eaux bien oxygénées, c'est la forme arséniate pentavalente qui prédomine,
- dans les eaux souterraines, en milieu réducteur, c'est la forme arsénite trivalente qui prédomine (AFSSA, 2004; INSPQ, 2002).

Les deux espèces organiques principales sont AMMA et ADMA (AFSSA, 2004, INSPQ, 2002).

La concentration en arsenic dans l'eau est variable dans le temps et dans l'espace : c'est principalement le changement de pH des eaux qui peut augmenter cette concentration, par dissolution d'hydroxydes de fer riches en arsenic.

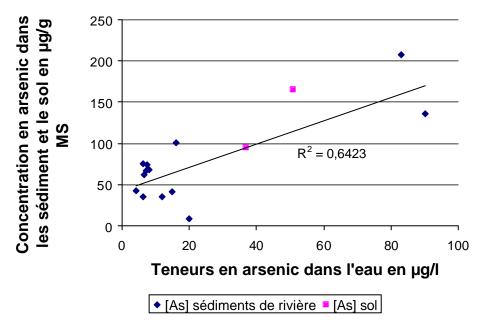
1.6.2 Comportement dans les roches et dans les sols

Une forte teneur dans les roches se traduit en général par des teneurs élevées dans les sols situés au-dessus (Darmendrail, 2000). Dans les sols, la mobilité de l'arsenic est assez limitée. La présence de minéraux d'argile, d'oxyde de fer et de magnésium et la quantité de matière organique peuvent influencer la solubilité des composés arséniés en favorisant le piégeage de l'arsenic (Laperche, 2005).

1.6.3 Passage d'un compartiment à l'autre

Une étude de recherche d'arsenic a été menée dans trois vallées du Tessin suisse (Val d'Isone, Val Colla et Val Veddasca) par Schmitt, en 2000, suite à des teneurs en arsenic dans l'eau de boisson atteignant 80 µg/L. A chaque point de prélèvement, les concentrations en arsenic dans l'eau (mesurées directement dans la rivière ou dans des puits) et sur les sédiments ou le sol avoisinants ont été mesurées. Pfeifer a travaillé dans une quatrième vallée du Tessin, celle du Malcantone. La Figure 3 visualise les résultats groupés des deux chercheurs.

Figure 3 : Relations entre les concentrations en arsenic dans l'eau et dans les sols, mesurées dans les vallées suisses du Val Colla, du Val d'Isone, du Val Veddasca et du Malcantone (Schmitt, 2000 ; Pfeifer, 2002).



Il semble donc qu'il existe une relation linéaire entre les variables «concentration en arsenic dans l'eau » et «concentration en arsenic dans le sol ou les sédiments » en un même lieu géographique. Le coefficient de détermination calculé est de 0,64, ce qui indique que 64 % des variations des teneurs en arsenic dans l'eau sont expliquées par les variations en arsenic dans les sols. Cela témoignerait donc d'un transfert possible de l'arsenic du compartiment sol vers le compartiment eau, et vice versa. Cette étude a montré également que les eaux de percolation dans les vallées (c'est-à-dire les eaux de surface) ne présentaient pas de concentrations anormales en arsenic, malgré des valeurs élevées dans les forages. Il a ainsi été conclu que pour ces vallées suisses, l'arsenic avait pour origine la roche-mère (et non les roches de surface) et était relâché de façon naturelle dans l'eau des nappes selon un processus continu.

De façon plus simple, le BRGM a retenu une association entre l'arsenic dans les sols et dans les eaux de captage, permettant de prévoir la concentration dans les eaux en arsenic :

- \triangleright Si [As]_{sol} < 60 μg/g¹ MS, alors [As]_{eau} < 10 μg/L
- ightharpoonup Si [As]_{sol} < 300 µg/g MS, alors [As]_{eau} < 50 µg/L (Darmendrail, 2000).

-

¹ Pour les unités de concentrations, il y a équivalence entre μg/g et mg/kg

2 ETENDUE GEOGRAPHIQUE ET NIVEAU DE LA CONTAMINATION EN ARSENIC DANS LES SOLS LORRAINS

Le sol est un milieu se prêtant bien à l'échantillonnage car il suffit d'un nombre relativement faible d'échantillons pour avoir des informations fiables des contaminations minérales sur un secteur géographique donné.

En effet, les minéraux des sols sont souvent bien dispersés en surface (jusqu'à une centaine de mètres) par ce qu'on appelle des halos de dispersion, l'échantillonnage en un point est ainsi représentatif d'une grande aire. Ces halos de dispersion sont dus à la fois à des phénomènes mécaniques de type mouvements de terrains ou érosion naturelle, mais également à des phénomènes chimiques de type processus pédogénétique (formation des sols).

Les échantillons ont été pris à la fois sur les sols et dans les alluvions des rivières. En théorie, il existe peu de différences sur la teneur en minéraux (et en arsenic) dans ces deux types de prélèvements (Darmendrail, 2000 ; Salviac, 1999).

2.1 Recueil des différentes données

La première étape de ce mémoire a été de chercher à regrouper l'ensemble des informations bibliographiques sur les concentrations en arsenic dans les sols lorrains. Cette recherche de données a été réalisée par sollicitation de l'ensemble de services Santé Environnement des DDASS de Lorraine et du Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM).

Ces données se sont très vite séparées en deux sur des arguments géologiques :

- ➤ la première partie concerne les terrains sédimentaires de l'ouest de la Lorraine, qui appartiennent au versant est du Bassin Parisien.
- ➤ la seconde partie concerne la partie est du département des Vosges, c'est-à-dire le massif montagneux lui-même, qui est géologiquement différent. La nature des roches n'est plus majoritairement sédimentaire, on y trouve des granites et des grès, et le contexte environnemental est celui d'une zone de montagne : zone fracturée, faillée et chahutée.

2.1.1 En terrains sédimentaires

A) Données bibliographiques

Plusieurs études avaient déjà indiqué la présence anormale d'arsenic dans certains sols du bassin sédimentaire lorrain. C'est pourquoi le cas du bassin de Neuves-Maisons et de la commune de Viterne n'est apparu que comme une demi surprise.

Le Tableau 2 suivant regroupe plusieurs données issues d'études environnementales qui cherchaient à décrire la situation en Lorraine vis-à-vis de certains métaux et de l'arsenic :

Tableau 2 : Recueil de données sur les contaminations en arsenic des sols lorrains.

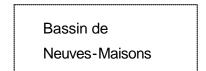
	Communes ayant fait l'objet de	[As] dans le
Nom de l'étude	l'étude et/ou couche	sol
	géologique incriminée	(µg/g MS)
Cas du volet santé de l'étude d'impact		
de l'Unité de Valorisation des	Laneuveville-devant-Nancy, Art	
Energies Renouvelables et de la	sur Meurthe et Saint-Nicolas-de-	11,3
Biomasse (URVERB) de Laneuveville-	Port	
devant-Nancy, De Giudici, 2004		
	Homécourt, Longwy et Micheville	
	calcaires ferrifères du	40
Référentiel géochimique des friches	Jurassique Moyen et Inférieur	
industrielles,	Custines, Thionville	
Darmendrail, 2000	Plaine alluviale de la Moselle	20
	Forbach, Grosbliederstroff	
	Terrains gréseux	
Evaluation de la contamination des	Neuves-Maisons	65
sols à Neuves-Maisons,	Bajocien moyen	55,9
Baubron, 2004	Aalénien	80,2

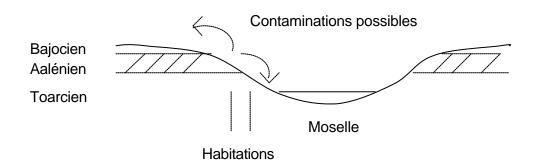
a) Cas de l'évaluation des contaminations des sols du secteur de Neuves-Maisons

Le cas du bassin de Neuves-Maisons a été le point de départ de cette étude. Des concentrations anormales en arsenic ont été trouvées dans l'ensemble de la vallée. Les cinq communes étudiées voisines de Neuves-Maisons avaient des situations géologique et géomorphologique identiques. La couche ferrifère de l'Aalénien, suspectée comme étant la source unique d'arsenic, est située en surplomb de la commune qui s'étend dans la vallée (de la Moselle ici, voir Figure 4). En effet, d'un point de vue morphologique, l'Aalénien constitue une rupture de pente dans le paysage que l'on peut suivre très facilement. Les contaminations qui « découlent » de cette couche concernent donc logiquement les zones situées en aval. Les phénomènes impliqués responsables de la contamination (allant jusqu'à 2 km en aval) seraient ceux de l'érosion : écoulement des eaux superficielles et profondes, éboulements, mouvements de terrain, érosion éolienne. Cependant, sur la commune de Viterne, des contaminations en arsenic en profondeur sont également constatées sur la couche située au-dessus de la minette de Lorraine : le Bajocien Inférieur. Cette contamination ne peut être expliquée uniquement par une contamination éolienne puisqu'elle est aussi présente en profondeur.

Les conclusions suggèrent donc que les concentrations élevées, correspondant à une anomalie géochimique régionale, ne sont pas uniquement liées à la formation ferrifère de l'Aalénien, mais seraient plus étendues et concerneraient les couches périphériques : le Bajocien d'une part, et le Toarcien d'autre part (Baubron, 2004).

Figure 4 : Schémas de la situation du bassin de Neuves-Maisons par rapport à la couche géologique de l'Aalénien.





B) Niveaux de contamination des terrains arséniés

a) Contamination des calcaires du Jurassique moyen :

Les teneurs en arsenic dans les calcaires du Dogger, dans le Jurassique Moyen (Bathonien et Bajocien) ont été mesurées à de nombreuses reprises, avec des valeurs allant jusqu'à 100-200 μ g/g (Pfeifer, 2002 ; Dictor, 2004 ; Baubron,2004), voire 200 μ g/g pour Darmendrail (2000).

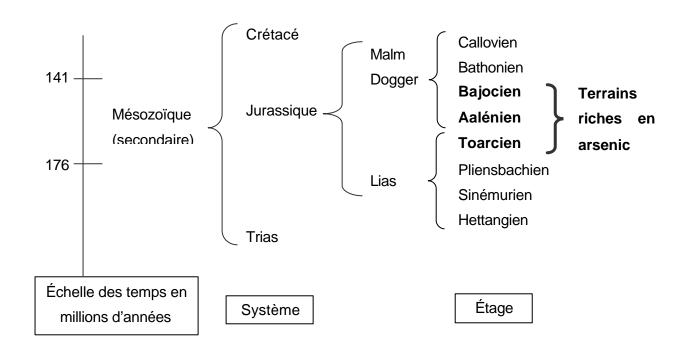
b) Richesse en arsenic de l'Aalénien : la « Minette de Lorraine »

La Minette de Lorraine est une couche géologique bien connue dans la région car elle a été très longuement exploitée pour sa richesse en fer. Or l'arsenic est un élément qui se substitue très facilement au fer. Les études statistiques de recherche d'arsenic établies par couche géologique par Baubron, 2004, attribuent les plus fortes concentrations moyennes et maximales à l'Aalénien :

- concentration moyenne : 80,2 μg/g,
- concentration maximale 119,6 μg/g,

La Figure 5 suivante résume la situation lorraine en positionnant les différentes couches géologiques riches en arsenic dans l'échelle stratigraphique.

Figure 5 : Positionnement dans l'échelle stratigraphique des terrains riches en arsenic



2.1.2 En terrain granitique : cas des Vosges

Dès 1977, la présence d'arsenic dans les Vosges était constatée. Les teneurs très contrastées (de 20 à 800 µg/g MS) étaient une cause de la difficulté d'interprétation de la répartition de cet élément. La répartition de l'arsenic dans les sols était alors considérée comme aléatoire par rapport aux couches et aux données géologiques de pédologie (Boulanger, 1977). Cette idée d'indépendance s'est par la suite confirmée : il existe des cas de figure où le fond géochimique régional n'est pas déterminé par la lithologie des terrains sous-jacents, mais plutôt par «des phénomènes géologiques de plus grand ampleur » (Darmendrail, 2000).

Ces phénomènes pourraient être :

- l'altération hydrothermale, c'est-à-dire la remontée en surface de fluides issus des profondeurs du manteau entraînant des modifications physico-chimiques des roches encaissantes,
- ➢ les grands accidents affectant la croûte terrestre, c'est le cas dans la région de l'effondrement du fossé rhénan ayant donné la plaine d'Alsace avec de chaque côté les massifs montagneux des Vosges et de la forêt Noire,
- ➤ le métamorphisme régional : c'est la modification physico-chimique des roches situées aux alentours d'une remontée d'un magma granitique, modifications dues aux contraintes combinées de chaleur et de compression (Darmendrail, 2000).

2.2 Traitement statistique des données du BRGM sur le département des Vosges

2.2.1 Recueil et hétérogénéité des données

Dans les années 1970, le BRGM a réalisé un inventaire du fond géochimique français dans un but de prospection minière. Ce travail, qui ne concerne pas l'ensemble des régions françaises (20 % seulement environ) s'est concentré sur les régions intéressantes d'un point de vue minéral, et notamment sur les Vosges (au sens du massif montagneux). L'échantillonnage de l'inventaire a été réalisé par une approche systématique et normalisée, avec une densité allant de 0,5 à 3 prélèvements par km². Les échantillons sur le sol ont été pris à une profondeur de 30 à 50 cm, en excluant l'horizon de surface (c'està-dire la partie supérieure du sol, soumise aux influences de la biosphère et du vent).

Pour la région Lorraine, l'hétérogénéité sur le nombre de mesures brutes réalisées par département est importante :

- pas de donnée en Meuse,
- > 18 en Meurthe-et-Moselle,
- > 208 en Moselle (toutes avec absence d'arsenic détecté),
- > 5 533 dans les Vosges.

Seules les données dans le département vosgien comportent des valeurs différentes de la limite de détection de 20 µg/g MS.

2.2.2 Traitement des données

L'étude du BRGM a pour unité géographique de base la commune. Ce mémoire a donc utilisé la même unité, même s'il est admis que la commune ne correspond à rien géologiquement.

La valeur de 20 µg/g MS a été donnée de façon systématique lorsque le système de détection ne permettait pas de déceler de l'arsenic.

Le point de départ de l'étude statistique est donc basé sur le fait qu'il n'est pas possible d'utiliser cette valeur de 20 dans les calculs car cette valeur n'est pas quantitative. C'est pourquoi la méthode s'est attachée exclusivement à un autre paramètre : la proportion des mesures supérieures à la valeur de 20 µg/g (c'est-à-dire le rapport entre le nombre de mesures supérieures à 20 et le nombre total de mesures effectuées sur la commune). Cette valeur reflète le niveau de gravité du problème lié à l'arsenic pour la commune.

Les communes ont été distribuées en trois groupes suivant cette proportion. Ce nombre de groupe a été choisi arbitrairement, mais permettait d'obtenir une carte assez facile à lire. Les trois couleurs utilisées sont les suivantes :

- ➢ le jaune correspond aux valeurs inférieures au 33^{ème} percentile de cette distribution,
- ➤ l'orange pour les valeurs comprises entre le 33^{ème} et le 66^{ème} percentile.
- ➤ le rouge pour les valeurs supérieures au 66 ème percentile.

Enfin, les méthodes statistiques permettent de quantifier le doute scientifique qui existe sur les mesures. En effet, toute méthode d'échantillonnage engendre une incertitude sur

la représentativité des valeurs obtenues. Le niveau de fiabilité des résultats pourrait se décomposer en trois composantes :

- ✓ la pertinence des échantillons recueillis.
- √ la pertinence de celle de la méthode de dosage utilisée,
- ✓ la prise en compte de la variabilité des résultats due au hasard.

Les méthodes statistiques utilisées ici ne permettent d'approcher que œtte troisième composante. Pour quantifier cette incertitude, les calculs suivants ont été menés :

- l'écart type de la proportion des mesures strictement supérieures à 20 μg/g a été calculé.
 - En considérant que notre variable est une variable binaire prenant la valeur 1 si la mesure est strictement supérieure à 20 µg/g et 0 sinon, l'erreur standard de la moyenne d'une variable codée 0 et 1 où p est la somme des 1 (et des 0) divisée par n, nombre total de valeurs prises, vaut :
 - $(p*(1-p)/n)^0,5$
- ➢ le rapport entre la proportion et l'écart type a été comparé à la valeur gaussienne de 1,96.
- ➢ si le rapport est inférieur à 1,96, il y a plus de 5 % de chances que les résultats de l'échantillonnage soient dus au hasard et donc la fiabilité des mesures sur la commune n'est pas très bonne. La teinte de la couleur sera claire.
- ➤ Si le rapport est supérieur à 1,96, la fiabilité de mesures est bonne, la teinte de la couleur sera foncée.

Dans les résultats, seul le jaune porte cette nuance finalement. La carte se trouve à la page suivante.

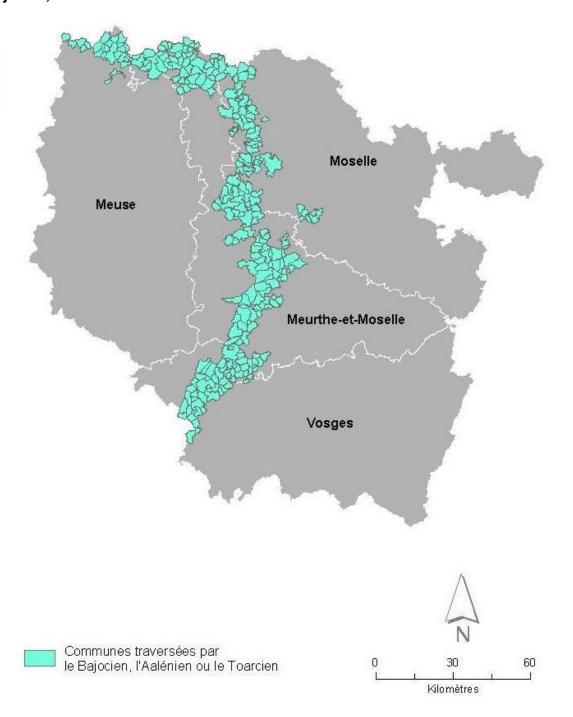
2.3 Cartes de la contamination en arsenic d'origine tellurique de la Lorraine

2.3.1 En contexte sédimentaire

La Figure 6 représente l'ensemble des communes lorraines traversées par l'un des trois terrains suivants : Bajocien, Aalénien ou Toarcien. Cette carte a été réalisée à partir de 31 cartes géologiques de la Lorraine au 1/50 000 en suivant les couches affleurantes et en reportant les communes traversées. Plusieurs difficultés se sont posées :

- les cartes géologiques n'indiquent pas forcément toutes les communes, certaines ont donc peut-être été oubliées,
- ➢ la liste des communes est à considérer comme une liste « large », c'est-à-dire que les limites des communes n'apparaissant pas sur les cartes géologiques, il était parfois délicat de dire si la commune était traversée ou non par une des couches. Dans tous les cas litigieux, la commune a été ajoutée à la liste,
- ainsi, pour beaucoup de communes, seule une petite partie de la superficie est concernée.

Figure 6 : Carte des communes lorraines traversées par les terrains géologiques du Bajocien, de l'Aalénien ou du Toarcien.

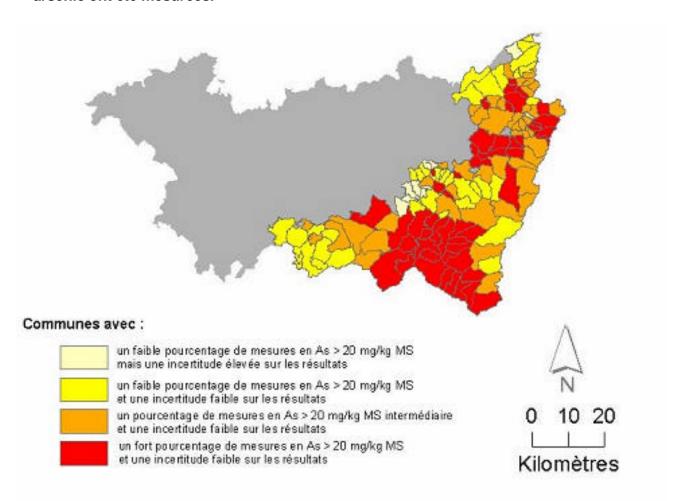


Ces communes représentent une population, d'après le recensement de l'Institut National de la Statistique et des Études Économiques (INSEE) de 1999, d'environ 660 000 habitants, soit 29 % de la population lorraine. Ce chiffre ne représente pas la population exposée, car pour certaines communes, seule une petite superficie de la commune est concernée. C'est le cas notamment des grandes villes comme Nancy ou Metz. La liste des communes concernées est disponible en annexe 1.

2.3.2 Cas des Vosges

La Figure 7 représente les communes vosgiennes recensées dans la base du BRGM pour lesquelles l'arsenic tellurique a été mesuré. Les communes situées à l'est du département correspondent au massif montagneux. Toute la partie grisée de la carte n'a pas fait l'objet de mesures.

Figure 7 : Communes vosgiennes recensées par le BRGM dont les teneurs en arsenic ont été mesurées.



Les données INSEE du recensement 1999 indiquent pour chaque couleur le nombre d'habitants :

Jaune clair: 5 000
 Jaune: 38 000
 Orange: 65 000
 Rouge: 66 000

Cette carte fait apparaître une certaine homogénéité dans les résultats, notamment au niveau de la tache rouge dans le sud-est du département. Cette richesse en arsenic se situe principalement aux alentours de la ville de Remiremont. La liste des communes concernées est disponible en annexe 2.

3 EVALUATION DES RISQUES SANITAIRES DE L'ARSENIC D'ORIGINE TELLURIQUE EN LORRAINE

Un des objectifs du mémoire était de confirmer la présence d'arsenic en Lorraine et d'établir la carte de la contamination de la région. Cette partie va donc utiliser les résultats de l'étape précédente et apporter de nouveaux éléments pour évaluer la pertinence de l'étude d'imprégnation.

L'évaluation des risques sanitaires présentée ici a donc été réalisée de façon succincte, avec beaucoup d'hypothèses simplificatrices, faute de temps. Elle ne représente donc qu'une approche très rapide de la situation et les résultats chiffrés ne doivent être considérés que comme des ordres de grandeur.

3.1 Identification des dangers

3.1.1 Toxico-dynamique de l'arsenic

Même si l'arsenic est considéré comme un poison, il est présent de façon naturelle à l'état de traces chez l'homme et on retrouve des concentrations moyennes en arsenic de 0,05 à 0,15 µg/g dans les ongles et les cheveux.

La toxicité de l'arsenic est difficile à estimer, car elle varie suivant les espèces arséniées réellement présentes (Laperche, 2003).

En présence d'arsenic dans leurs environnement, certains micro-organismes ont développé une forme de résistance consistant à méthyler l'arsenic en le rendant organique. En effet, cette forme organique est moins toxique pour les organismes. C'est pourquoi, par simplification, on ne considérera donc par la suite que la toxicité des formes inorganiques.

De plus, l'arsenic pentavalent est biologiquement moins toxique que l'arsenic trivalent (voir plus loin mécanismes d'action toxique). Les autres formes d'oxydation de l'arsenic étant peu présentes, leur toxicité n'a pas été étudiée et ne sera donc pas abordée ici. La toxicité de l'arsenic est également fonction de la voie d'absorption (Laperche, 2003).

A) Absorption

En toxicologie, on retient habituellement trois voies principales d'absorption :

- ➤ la voie d'entrée cutanée : c'est une voie mineure d'absorption de l'arsenic, lorsque la peau est intacte (Pichard,2005). Il n'existe pas de données sur cette voie d'exposition, elle ne sera donc pas pris en compte dans ce mémoire,
- la voie respiratoire : lorsque l'arsenic, fixé en général à des particules dont le diamètre est inférieur à 2 μm, est déposé sur l'arbre respiratoire, le taux d'absorption dépend généralement fortement de la solubilité du composé arsénié. La quantification de cette absorption est très difficile (Ravault, 2004). Selon Pichard, 30 à 34 % de l'arsenic qui entre dans l'organisme par cette voie est absorbé,

➢ la voie digestive : entre 90 et 95 % de l'arsenic qui entre dans l'organisme par cette voie est absorbé (Pichard, 2005 ; Conseil Départemental d'Hygiène de Moselle, 1999 ; INSPQ, 2002). Le taux d'absorption dépend également du substrat avec lequel il est ingéré : aliments, eau, sol, boisson…(Ravault, 2004).

Pour l'arsenic inorganique, comme par exemple l'arsénobétaïne (CH₃)₃As⁺CH₂COOH ou l'arsénocholine (CH₃)₃As⁺(CH₂)₂OH, il n'y a pas de fixation observée sur les tissus et tout est éliminé sans aucune transformation.

B) Distribution

Après ingestion, l'arsenic inorganique diffuse rapidement dans la circulation sanguine où il se fixe facilement aux protéines plasmatiques comme les globines des hématies. Il est alors distribué facilement dans tout l'organisme: foie, rate, poumons, muscles, reins, peau et os, mais son accumulation a lieu principalement dans les os, les muscles et la peau (INSPQ, 2002; Pichard,2005). Des études chez l'homme suggèrent que l'arsenic inorganique s'accumulerait avec l'âge (Ravault, 2004).

C) Métabolisme

Le principal métabolisme de l'arsenic consiste en sa méthylation, qui entraîne une baisse de sa toxicité. La méthylation a lieu à partir de la forme trivalente. Donc sous forme pentavalente, l'arsenic sera d'abord réduit sous forme trivalente. Puis, les mécanismes du métabolisme conduisent à la formation d'AMMA, puis à celle d'ADMA. Cette méthylation a lieu principalement dans le foie.

Cependant, le processus de méthylation de l'arsenic peut être très différent au niveau de la vitesse et du rendement de réaction à la fois entre les différentes espèces de mammifères mais également entre les groupes de population, voire entre chaque individu (AFSSA, 2004 ;Pichard,2005).

D) Excrétion

L'arsenic pentavalent et les métabolites méthylés sont éliminés rapidement dans les urines.

L'arsenic trivalent est éliminé selon deux processus :

- excrétion urinaire rapide,
- détoxication par méthylation séquentielle de l'arsenic trivalent dans le foie en AMMA et en ADMA (INSPQ, 2002).

Une étude expérimentale menée chez des volontaires a montré que, pour une dose ingérée d'arsenic total :

- ▶ 46 à 63 % est éliminé dans les 4 à 5 jours,
- > 30 % est éliminé avec une demi-vie de plus d'une semaine,
- le reste est éliminé avec une demi-vie supérieure à un mois.

Les matières fécales peuvent éliminer jusqu'à 5% de la dose ingérée. L'élimination dépend aussi de la spéciation, de la voie d'administration et de la dose d'arsenic. Ainsi, pour la forme pentavalente, la voie orale et les faibles doses sont associées à une élimination plus rapide (Pichard,2005).

Les voie d'élimination secondaire de l'arsenic inorganique total sont la peau, les cheveux, les ongles et la sueur. On estime la demi-vie biologique moyenne de l'arsenic inorganique chez l'être humain entre 2 et 4 jours (INSPQ, 2002).

3.1.2 Effets de l'arsenic sur la santé

A) Effets aigus

a) Organes cibles

Par ingestion, il n'existe pas réellement d'organes cibles. Mais en cas d'intoxication aiguë, les taux les plus importants sont retrouvés dans le foie et les reins (Pichard, 2005).

b) Effets cliniques

La symptomatologie provoquée par l'arsenic est différente selon les individus, les groupes de population et les zones géographiques considérées (AFSSA, 2004).

La toxicité aiguë se caractérise par des problèmes gastro-intestinaux de type nausée, vomissements, douleurs abdominales et diarrhées, les selles prenant parfois l'aspect « eau de riz » décrit sous le nom de « choléra arsenical ». Ces symptômes interviennent dans les 10 minutes et jusqu'à quelques heures après l'ingestion. On observe souvent également une instabilité hémodynamique, se traduisant soit par une tachycardie sinusale, soit par une forte chute de tension.

La liste des effets observés est longue et variée, on notera principalement des symptômes de neuropathie périphérique (troubles sensitifs au niveau des extrémités du corps et diminution des réflexes), d'encéphalopathie aiguë (convulsion, coma, détresse respiratoire, œdème pulmonaire) et de troubles neuropsychiques (confusion, perte de mémoire, irritabilité) (Pichard, 2005).

B) Effets chroniques

a) Organes cibles

L'un des organes cibles des dérivés inorganiques de l'arsenic est la peau. Les autres organes touchés sont : le système nerveux central, le tube digestif, le cœur, les vaisseaux et le système sanguin (Pichard, 2005).

b) Mécanismes d'action toxique

Ces mécanismes ne sont donnés que pour les formes trivalentes et pentavalentes car aucune donnée n'a été trouvée sur les autres formes d'oxydation.

L'arsenic trivalent

L'arsenic trivalent entraîne une perturbation de certaines activités enzymatiques. Il induit plus précisément une inhibition du complexe pyruvate déshydrogénase, diminuant ainsi l'activité du cycle de l'acide citrique, la production d'Adénosine Triphosphate (ATP), la production de glucose et son entrée dans les cellules (Laperche,2003, Pichard, 2005,). Il inhibe également l'activité des enzymes du système du glutathion (rôle important de transporteur d'hydrogène maintenant les protéines à l'état réduit) (Livertoux, 2005).

L'arsenic pentavalent

Les arséniates AsO₄⁴⁻ interfèrent avec les mécanismes de formation de l'ATP et de l'adénosine diphosphate (ADP) en inhibant la phosphorylation oxydative. Ceci entraîne alors une baisse générale du métabolisme. L'arsenic pentavalent est aussi réduit en arsenic trivalent devenant alors plus toxique (Laperche,2003, Livertoux, 2005).

c) Effets cliniques

Non cancérigènes

Les effets cliniques observés sont les mêmes par inhalation et par ingestion.

Les lésions sur la peau sont des lésions d'hyper-kératose des paumes des mains et de la plante des pieds, associées à des excroissances en forme de verrues ou boutons. Cette hyper-kératose est associée à une alternance de zones d'hyper-pigmentation et d'hypopigmentation sur la face, le cou et le dos. On appelle cette maladie la maladie des pieds noirs. Elle est également caractérisée par une altération progressive de la circulation sanguine périphérique des pieds, se manifestant par une sensation de froid et d'engourdissement, suivie d'ulcérations. Elle évolue alors vers une gangrène sèche.

Il existe là aussi un grand nombre d'autres effets cliniques pathogènes :

- ➤ effets cardiovasculaires (troubles du rythme ventriculaire, trouble de la conduction),
- effets sur le système vasculaire périphérique (cyanose des doigts et des orteils, épaississement des artères),
- élévation de la pression artérielle,
- effets hématologiques (anémie, leucopénie),
- atteintes du système nerveux (paresthésie des extrémités des pieds et des mains, douleurs musculaires et fatigue), atteinte des nerfs moteurs et sensoriels,
- > effets hépatiques (élévation du niveau sanguin des enzymes hépatiques),
- prévalence du diabète sucré et excès de mortalité par diabète (Pichard, 2005).

Pour les effets tératogènes, par ingestion, il a été montré que les arsénites et les arséniates passent la barrière placentaire chez les animaux. Un pouvoir tératogène a été montré chez certaines espèces animales (souris) avec augmentation des malformations du squelette et du nombre de morts fœtales (Pichard, 2005).

Par inhalation, chez le rat, aucun effet tératogène n'a été trouvé : ni mortalité plus élevée, ni malformation du squelette ou diminution du poids de naissance.

Cancérigènes

Seize composés de l'arsenic sont classés comme cancérigènes dans la base de données du Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC). Les principaux sont : l'arsenic, l'arséniate de calcium, les arsénites de cuivre et de sodium, le pentoxyde de diarsenic et le trichlorure d'arsenic. Les 16 composés sont classés comme cancérigènes de groupe 1, c'est-à-dire comme « cancérigènes certains » (CIRC, 2005).

Par ingestion, les hyper-kératoses et les excroissances décrites ci-dessus peuvent évoluer en lésions cancéreuses. Des études épidémiologiques ont établi une association entre la mortalité causée par différentes formes de cancer et la consommation d'eau contaminée (Tseng, 1977; Hsueh, 1995). Une augmentation du risque de cancer de la peau, de la vessie, des reins, du foie, du poumon et de l'utérus a été constatée. Une augmentation modérée de mortalité par cancer de la prostate semble possible. Enfin,

l'exposition à l'arsenic est associée statistiquement au cancer de la cavité buccale et du pharynx (Pichard,2005).

Par inhalation, plusieurs études de populations exposées professionnellement à l'arsenic inorganique (travailleurs de fonderie, travailleurs d'usine de fabrication de certains pesticides...) établissent une relation entre l'inhalation d'arsenic inorganique et les cancers des voies respiratoires (Higgins, 1986; Sandström, 1993).

3.2 Relation doses réponses

3.2.1 Effets aigus

A) Par ingestion

Pour une souris, la dose létale en trioxyde d'arsenic (As_2O_3) est de 34,5 µg/g. En revanche, pour l'arsenic organique comme le monométhylarséniate, la dose fatale n'est plus que de 1800 µg/g, soit une toxicité 50 fois moins élevée.

La dose potentiellement mortelle chez l'homme est de 1 à 3 μ g/g, avec une fourchette large de [2;21] (Laperche, 2003 ; Pichard, 2005).

Pour le Gouvernement de l'Ontario une dose de 0,02 µg/g représente la dose d'apparition possible d'effets. Cependant, chez certains individus, aucun effet n'est observé pour une dose ingérée de 0.15 µg/g.

L'ATSDR (Agency for Toxic Substance and Disease Registry) propose un MRL (Minimum Risk Level)² provisoire de $0,005~\mu g/g$ pour une exposition aiguë par voie orale. Cette valeur a été établie à partir d'une intoxication massive de 220 personnes ayant consommé de la sauce de soja contaminée par de l'arsenic. La dose journalière a été estimée à 3 mg soit $0,05~\mu g/g$. Les signes cliniques retenus ont été l'œdème de la face et les troubles gastro-intestinaux. De cette étude, un LOAEL³ (Lowest Observed Affected Effect Level) de $0,05~\mu g/g/j$ a été déduit. Un facteur d'incertitude de 10 est appliqué pour l'extrapolation à partir d'un LOAEL :

Calcul: $0,05 \mu g/g/j * 1/10 = 0,005 \mu g/g/j$.

B) Par inhalation

Chez l'homme, pour une concentration en arsine $AsH_3(g)$ supérieure à 250 $\mu g/g$, on observe une mort instantanée. Pour une concentration voisine de 100 $\mu g/g$, le décès a lieu dans les 30 minutes (Laperche, 2003).

² Le MRL est une estimation journalière de la dose d'exposition à un polluant spécifique n'entraînant aucun effet non cancérigène chez un individu sur une durée d'exposition spécifiée

³ LOAEL: c'est la plus petite dose d'exposition à une substance donnée à laquelle on observe statistiquement ou biologiquement une augmentation dans la fréquence ou la sévérité des effets sanitaires chez le groupe de population exposé par rapport au groupe témoin

3.2.2 Effets chroniques

A) Par ingestion

a) Effets non cancérigènes

Chez l'homme, les symptômes de lésion de la peau apparaissent pour une exposition à partir de 0,01 à 0,1 mg As/kg/j.

L'ATSDR, l'US EPA (US Environmental Protection Agency) et l'OEHHA (Office of Environmental Health and Hazard Assessment) proposent respectivement un MRL, une RfD (Referentiel Dose) et un REL (Reference Exposure Level) de 3*10⁻⁴ µg/g/j⁴. Cette valeur tient compte des deux sources principales d'exposition à l'arsenic inorganique : l'eau (boisson et préparation des aliments) et les aliments. Elle a été établie à partir de deux études épidémiologiques prenant en compte la maladie des pieds noirs ainsi qu'une hyper pigmentation. Ont été déterminés à partir de ces études un NOAEL de 0,0008 μg/g/j, et un LOAEL de 0,014 μg/g/j. Un facteur d'incertitude de 3 pour l'absence de données sur la toxicologie de la reproduction et les variations intra-espèces a été appliqué.

Calcul: $0.0008 \, \mu g/g/j * 1/3 = 3*10^{-4} \, \mu g/g/j$.

Effets cancérigènes b)

L'US EPA et l'OEHHA proposent un ERU de 1,5 (µg/g/j)-1. Cette valeur résulte d'un rapport de synthèse réalisé par l'US EPA en 1988. L'effet critique retenu était celui du cancer cutané. L'âge et la dose étaient deux facteurs pris en compte dans le modèle (Pichard, 2005).

L'OMS précise qu'actuellement d'importantes incertitudes subsistent sur les risques à de faibles concentrations et que le manque de données ne permet pas de trancher entre un modèle linéaire ou non.

B) Par inhalation

Effets non cancérigènes a)

Pour les effets tératogènes, une concentration n'induisant pas d'effet chez la femelle rat est de 20 mg As/m³ (valeur prise comme LOAEL). Ceci permet de définir un NOAEL de 8 mg As/m³ (Laperche, 2005).

L'OEHHA propose un REL de 3*10⁻⁵ mg/m³ pour une exposition chronique par inhalation. Cette valeur est issue d'une étude expérimentale menée chez des souris. Cette étude a conduit à un LOAEL de 0,2 mg As/m³ qui donne, par ajustement à une exposition continue, une concentration de 3,3 10⁻² mg As/m³ (=0,2*4h/24h)

Un facteur d'incertitude de 1 000 a été appliqué : 10 pour l'utilisation d'un LOAEL, 10 pour l'extrapolation de données animales à l'homme, et 10 pour la variabilité au sein de la population.

⁴ MRL, RfD et REL sont trois termes différents des trois organismes différents, mais pour une seule et même grandeur. Voir la définition du MRL page précédente.

Calcul: $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ mg As/m}^3 *1/1000 = 3*10^{-5} \text{ mg As/m}^3$

b) Effets cancérigènes

Les lésions sur la peau apparaissent pour des niveaux d'exposition de 0,007 mg As/m³ à 0,613 mg As/m³.

Plusieurs études démontrent une augmentation statistiquement significative du risque de cancer des poumons, pour des niveaux d'exposition à l'arsenic supérieurs à 75 mg/m³/an (Laperche, 2005).

L'US EPA propose un ERU de 4,3*10⁻³ (µg/m³)⁻¹. Cette valeur a été établie en prenant en compte l'apparition de cancers pulmonaires dans deux études épidémiologiques réalisées en milieu professionnel. Il s'agit d'une moyenne géométrique calculée.

L'OEHHA propose un ERU= 3,3*10⁻³ (µg/m³)⁻¹. Cette valeur a été estimée à partir de trois études épidémiologiques chez des travailleurs exposés. Un modèle linéaire a été utilisé pour tenir compte de la forte interaction avec le facteur tabac.

On retiendra la valeur de l'OEHHA car elle se base sur trois études épidémiologiques, au lieu de deux seulement pour l'US EPA, et de plus elle est plus protectrice.

3.3 Estimation des expositions de la population lorraine à l'arsenic d'origine tellurique

L'adage «tout est poison, rien n'est poison, c'est la dose qui fait le poison » a montré l'importance de l'exposition. En théorie, la dose qui serait la plus intéressante à prendre en compte est la dose reçue par les cellules-cibles. En réalité, elle est souvent très délicate (voire impossible) à estimer et plusieurs indicateurs d'exposition lui sont substitués (Auburtin, 1995).

Seule **l'exposition chronique** sera considérée ici. En effet, l'exposition par le sol n'entraîne pas généralement d'exposition aiguë et il n'y a pas a priori d'empoisonnement à l'arsenic en Lorraine.

3.3.1 Mise en évidence d'une population à risque pour la contamination par l'arsenic ?

Les données actuelles ne permettent pas de définir de groupes sensibles à l'arsenic. En effet, la capacité de méthylation de l'arsenic induisant une baisse de la toxicité serait dû à un polymorphisme génétique suspecté, qui varierait selon l'âge, le sexe, l'état nutritionnel et l'exposition simultanée à d'autres contaminants (INSPQ, 2002; Livertoux, 2005). C'est pourquoi on ne définit pas de groupes vulnérables particuliers.

3.3.2 Voie d'exposition

Cette partie porte sur l'exposition liée aux couches de sols contenant de l'arsenic, repérées sur la carte de la Lorraine réalisée plus haut.

A) Différentes voies d'exposition

a) Par contact

La voie d'exposition par contact direct sera négligée car les composés arséniés passent très peu la barrière de la peau.

b) Par inhalation

L'arsenic se volatilise peu dans l'atmosphère. De plus, l'exposition ayant lieu par le sol, le brassage de l'air fait qu'il y a peu de risque que les vapeurs d'arsenic soient concentrées en un endroit. Enfin, pour ce qui concerne le tabac, la quantité d'arsenic absorbée par cigarette est estimée à 40 µg (Laperche,2003), mais on ne considère pas tabac comme une source significative d'exposition (INSPQ,2002). La voie par inhalation ne sera pas prise en compte par la suite.

c) Par ingestion

L'arsenic est considéré comme un oligo-élément essentiel à la vie. Les besoins journaliers humains ont été estimés entre 10 et 20 µg/j (Laperche,2003).

Pour la population générale, l'exposition totale à l'arsenic varie considérablement en fonction du régime alimentaire.

Par ingestion de fruits et légumes contaminés

Lorsqu'un sol est contaminé, il convient d'étudier le transfert possible des polluants aux végétaux poussant sur ce sol, afin de savoir si la consommation de ces légumes pose un problème aggravant de contamination pour la population.

Transfert de l'arsenic des sols aux plantes

L'arsenic est un élément phytotoxique. Sa biodisponibilité et son absorption par les plantes dépend de nombreux facteurs comme les propriétés physico-chimiques du sol (porosité, pH, perméabilité, quantité d'argiles, conditions de drainage...), mais aussi la forme d'oxydation de l'arsenic, la quantité de matière organique, la présence éventuelle de phosphates compétiteurs...Par exemple, les sols humiques (riches en argile) auront tendance à être plus riches en arsenic, puisque l'argile fixe facilement l'arsenic.

Ce transfert de l'arsenic du sol aux plantes a été étudié en Lorraine dans le cadre de la demande d'autorisation d'agrandissement de l'aciérie électrique de Neuves Maisons (Merlen, 2004). Le but de l'étude était de voir l'influence des rejets atmosphériques sur les plantes poussant en périphérie de l'installation. Trois stations différentes ont été retenues : deux sous l'influence directe de la SAM, une troisième à Viterne, considérée comme indépendante des rejets mais située sur le même substrat géologique. Le Tableau 3 et le Tableau 4 présentent les résultats de l'étude.

Tableau 3 : Concentration en arsenic dans les sols des trois stations retenues dans l'étude des polluants du bassin de Neuves-Maisons (Merlen, 2004).

	Station 1	Station 2	Station 3
	Neuves-Maisons	Neuves-Maisons	Viterne
Concentration			
d'arsenic en surface	64	51	68
(μg/g MS)			
Concentration			
d'arsenic en	52	48	Pas de données
profondeur	JZ	40	r as ue donnees
(µg/g MS)			

Les trois stations présentent des teneurs en arsenic dans les sols relativement voisines. Or, la station de Viterne était supposée être la station témoin, vierge de toute contamination dûe à l'industrie. On explique cette anomalie positive de façon géologique. Trois légumes ont été analysés. Ces trois légumes sont des légumes-types, représentatifs de trois classes de légumes: la carotte représente les légumes-racine, la laitue les légumes-feuille et le haricot les légumes-potager.

Pour chaque station, les légumes ont été cultivés à la fois sur le sol naturel, en place et sur un sol rapporté, c'est-à-dire vierge de toute contamination en arsenic et considéré comme le témoin (la concentration en arsenic y a été mesurée à 1,26 µg/g MS).

Tableau 4 : Résultats et relations entre les teneurs en arsenic des sols et dans les légumes sur les 3 sites de l'expérience (Merlen, 2004).

	Concentrations en arsenic (µg/kg de matière fraîche)					
	Station 1 Neuves-Maisons		Station 2 Neuves-Maisons		Station 3 Viterne	
	Sol naturel	Sol	Sol naturel	Sol	Sol naturel	Sol
		rapporté	Cornatarer	rapporté		rapporté
Carottes	15,4	2,5	7,4	4,3	5,4	2,1
Haricots	2,2	2,5	2,2	1,8	2,1	2,6
Salades	9,7	4,1	7,0	3,6	3,7	4,0
Moyenne des concentrations des légumes	9,1	3,0	5,5	3,2	3,7	2,9

Les concentrations en arsenic de ces légumes oscillent entre 1,8 et 15,4 µg/kg de matière fraîche. La carotte apparaît comme le légume concentrant le mieux l'arsenic.

Cependant, toutes ces teneurs sont de l'ordre de grandeur des teneurs auxquelles on peut s'attendre dans les légumes « tels que consommés » et dont la teneur moyenne est de 12 µg/kg (Merlen, 2004).

Enfin, on observe dans les trois stations des résultats plus importants dans les sols naturels que ceux rapportés, cela indique donc bien une concentration anormale d'arsenic dans les légumes cultivés sur les sols naturels.

On notera que le haricot vert pourrait être utilisé comme plante indicatrice : sa croissance correcte dans un sol est signe d'une contamination faible en arsenic car il supporte mal sa présence (Gouvernement de l'Ontario, 2005).

En conclusion, l'exposition de la population par des aliments ayant poussé sur un sol riche en arsenic peut entraîner une augmentation de la dose ingérée, donc de la dose d'exposition.

Exposition alimentaire : dose d'exposition en France et pour différents pays

Dans les aliments, on retrouve de l'arsenic à la fois sous forme organique et inorganique en proportion très variable. Les aliments les plus riches en arsenic total sont les viandes, les produits marins de type coquillages (très riches en dérivés organiques) et le vin, parfois très riche en arsenic lorsque la vigne a été traitée intensivement avec des

pesticides arséniés (Laperche, 2003). Depuis 2001, l'usage de tout dérivé minéral d'arsenic en viticulture a été interdit (Grillet, 2004).

Le Tableau 5 et Tableau 6 résument les données d'exposition à l'arsenic dans différents pays par voie alimentaire.

Tableau 5: Estimation des apports journaliers en arsenic total fournis par l'alimentation pour un adulte, dans différents pays (Nairaud, 2000; Ravault, 2004; INSP, 2002; AFSSA, 2004).

Dose d'arsenic total (organique les adultes	Nom de l'étude	
France	163, 147, 109	(AFSSA, 2004)
Tance	109	(Nairaud, 2000)
Pays basque espagnol	298	(Nairaud, 2000)
Danemark	118	(Nairaud, 2000)
Nouvelle-Zélande	140	(Nairaud, 2000)
USA	63	(Ravault, 2004)
05A	16,7 à 129	(AFSSA, 2004)
Pologne	16,7 à 129	(AFSSA, 2004)
Canada	16,7 à 129	(AFSSA, 2004)
Carlada	48	(INSPQ, 2002)
Japon	de 160 à 280	(Ravault, 2004)
	63	(Nairaud, 2000)
Royaume-Uni	65	(AFSSA, 2004)
	16,7 à 129	(AFSSA, 2004)

Tableau 6 : Estimation des apports journaliers en arsenic total pour un enfant fournis par l'alimentation, dans différents pays (AFSSA, 2004).

Dose d'arsenic total (organique les enfantes	Nom de l'étude	
Canada, Pologne, USA & Royaume-Uni	1,26 à 15,5	AFSSA, 2004

En France, la dose ingérée par personne, dans le cadre d'une alimentation normale, est donc estimée entre 109 et 163 μ g/j. Ce tableau montre que les zones habituellement plus consommateurs de produits de la mer comme le Pays Basque ou le Japon possèdent les valeurs les plus élevées. A titre d'indication, à Taiwan, où les populations sont très fortement exposées à l'arsenic hydrique, l'ingestion journalière a été estimée de l'ordre de 1 000 μ g/j uniquement par apport hydrique.

Pour les enfants, l'AFSSA ne propose pas de valeur française, mais uniquement un intervalle moyen calculé sur quatre pays.

L'ingestion d'arsenic inorganique seul est très difficile à évaluer. Elle varie beaucoup selon les habitudes alimentaires. On estime ainsi que lors d'un repas, 100 % de l'arsenic hydrique et 25 % de l'arsenic alimentaire est inorganique (Ravault, 2004).

Par ingestion de sols et de poussières

Dans le sol, l'arsenic est majoritairement présent sous sa forme pentavalente, jugée moins toxique que celle trivalente. La biodisponibilité de l'arsenic dans le sol est relativement faible : une étude sur le singe a montré une biodisponibilité de l'arsenic dans le sol ingéré égale à 11 %, alors qu'elle était de 91 % lorsque l'arsenic était administré par gavage. Cette faible biodisponibilité de l'arsenic dans un sol peut s'expliquer par l'immobilisation de cet élément, soit dans des minéraux cristallisés, soit sur les oxydes de fer (De Giudici, 2004).

Les chiffres des taux d'ingestion moyens des sols et poussières de l'US EPA, en 2002, donnent une estimation de 140 μ g/j en moyenne (maximum 560 μ g/j) pour les enfants de moins de 6 ans, et de 50 μ g/j en moyenne (maximum 400 μ g/j) pour les adultes.

La voie d'ingestion de sols et de poussières sera retenue comme source d'exposition dans le cas de notre étude, notamment pour les enfants.

B) Synthèse des expositions et voie retenue

En 2005, le Gouvernement de l'Ontario, considère que 99 % de l'exposition de ses habitants est assurée par l'ingestion d'aliments et d'eau. Cette exposition est présentée dans le Tableau 7.

Tableau 7: Exposition à l'arsenic des habitants de la province de l'Ontario (Gouvernement de l'Ontario, 2005).

Facteurs de contamination	Part de l'exposition totale en %
Aliments	84
Eau d'alimentation	15
Sols & poussières	1
peau	0

Ce tableau montre que sans exposition particulière, c'est uniquement la voie d'ingestion qui constitue la voie d'exposition à l'arsenic.

Donc, puisque qu'il paraît possible de comparer la population de l'Ontario à celle de la Lorraine au niveau de l'habitude alimentaire et de la qualité de l'environnement, lors de la réalisation de nos scénarii, seuls les facteurs « sols et poussières » et « ingestion de produits locaux contaminés localement » seront les facteurs susceptibles d'augmenter la dose journalière d'exposition.

En population générale, la principale voie d'exposition à l'arsenic inorganique est donc l'ingestion. Dans les pays où la concentration dans l'eau en arsenic dépasse les 50 μg/L, l'apport par les aliments est négligeable. En revanche, plus la concentration dans les eaux diminue (et ce sont ces situations d'exposition qui sont rencontrées en France), plus l'apport alimentaire sera important à évaluer (Ravault, 2004).

La voie retenue dans nos scénarii sera donc l'ingestion, alimentaire d'une part, et pour les enfants, l'ingestion aggravante de particules de sols et de poussières contaminées.

3.3.3 Scénarii d'exposition

Les populations concernées sont donc les enfants de moins de 6 ans (car leur consommation de particules de sols et de poussières contaminées est importante) et les

adultes âgés de 15 ans et plus. Les paramètres nécessaires permettant de calculer les doses d'exposition pour chacun des scénarii sont :

- la quantité d'eau ingérée,
- > la concentration en arsenic de ces eaux,
- le poids corporel,
- la quantité de sols et de poussières ingérées,
- la concentration en arsenic de ces sols et des poussières,
- la quantité d'arsenic moyenne ingérée par voie alimentaire
- ➤ la concentration en arsenic moyenne des fruits et légumes cultivés dans les jardins locaux, ainsi que la part qu'ils représentent dans la consommation générale.

Le Tableau 8 rassemble les différentes valeurs retenues dans chacun des scénarii pour les paramètres intervenant dans l'équation mathématique.

- ➤ Pour la consommation d'eau, ainsi que pour l'ingestion de légumes et de pommes de terre, il s'agit des données nationales issues de l'étude INCA1 (enquête individuelle et nationale sur les consommations alimentaires de 1999) pour les adultes, et de l'Exposure Factors Handbook de l'US EPA pour les enfants.
- La concentration en arsenic dans l'eau est celle moyennement rencontrée en Meurthe-et-Moselle, issue de la base de données SISE-EAUX sur les années 2000-2004. Cette moyenne majore la valeur réelle. En effet, elle a été réalisée en moyennant toutes les données sur les 4 ans. Or, lors d'un dépassement de la valeur de 10 μg/L sur un captage, de nouvelles mesures sont faites. Il y a donc dans la base une sur-représentation des valeurs élevées à cause des captages posant des problèmes d'arsenic.
- Les poids donnés sont ceux de Lasalle (2005) pour les adultes, et issus d'une moyenne européenne pour les enfants (Allemagne, Suisse, Pays-Bas, Royaume-Uni et Italie), extrait de European Exposure Factors Sourcebooks, 2005.
- ➤ Les quantités de sols et de poussières ingérés proviennent de l'Exposure Factors Handbook.
- Le facteur de biodisponibilité de l'arsenic dans la terre et les poussières est évalué à 0,11 chez les singes (De Guidici, 2004). Deux valeurs sont alors proposées par la suite devant l'absence de donnée : une de 0,2 proche de celle des singes, une de 0,9 beaucoup plus conservatrice.
- ➤ Les concentrations en arsenic des sols lorrains sont celles déterminées par Baubron en 2004 (moyenne sur les terrains de l'Aalénien et du Bajocien). C'est la valeur moyenne qui a été retenue car le ministère de l'aménagement et de l'environnement a précisé, en 2000, que lorsqu'un sol est déclaré comme milieu d'exposition, «les personnes n'étant pas exposées en un point unique du milieu sol, on évaluera l'impact sur ces milieux d'exposition non plus à partir d'une valeur ponctuelle, mais à partir d'une moyenne de valeurs représentant le milieu d'exposition ».
- La dose d'arsenic issue de l'apport alimentaire provient des conclusions de l'AFSSA en 2004.
- La concentration moyenne en arsenic des légumes ayant poussés dans les jardins contaminés a été déterminée par Merlen en 2004, en moyennant les résultats des trois légumes types.

Tableau 8 : Scénarii et paramètres humains d'exposition

Scénario	Exposition chronique		
population	Enfant	Adulte	
Consommation d'eau (L/j)	0,6 / 0,7	2 / 2,9	
Concentration en arsenic	4	4	
de l'eau de boisson (µg/L)	7	7	
Poids moyen (kg)	23,2	73	
Quantité de sols et de poussières ingérée	140 / 560	50 / 400	
(mg/j)	140 / 300	307 400	
Concentration en arsenic de ces sols et	65	65	
poussières (μg/g MS)	00	00	
Facteur de biodisponibilité de l'arsenic contenu	0,2 / 0,9	0,2/0,9	
dans les sols et les poussières	0,270,5	0,2/ 0,5	
Apport alimentaire en arsenic (µg/j)	1,3 / 15,5	109 / 163	
Quantité de légumes, fruits ingérée (g/j)	135	186	
Concentration en As des légumes et fruits du	6,1	6,1	
jardin (µg/kg de matière fraîche)	0, 1	0, 1	

3.3.4 Calcul des doses journalières d'exposition

La dose journalière d'exposition (DJE) pour une voie j (DJE $_j=\Sigma E_{ij}$) est calculée en fonction de la durée de contact avec le milieu i et de la concentration du polluant dans le milieu. Plus précisément, pour un milieu i et une voie j :

 $E_{ii} = C_i * Q_{ii}$

E_{ii}: exposition liée au milieu i par la voie d'exposition j (mg/j)

C_i:concentration du contaminant dans le milieu i (mg/kg)

Q_{ii} : quantité de milieu i administré par la voie j par jour (kg/j)

Pour calculer l'ensemble des DJE, on considérera que :

DJE= 0,95 {(DJE_{eau})+ 0,2 (ou 0,9) *(DJE _{sol+poussière})+

0,25*[(DJE_{Apport alimentaire normal}+)+0,25 (ou 0,30)*(DJE_{alimentation jardin})]}

DJE = 0,95 {($C_{eau}^*Q_{eau}$)+ 0,2 (ou 0,9) ($C_{sol+poussière}^*Q_{sol+poussière}$)+

 $0.25*[(DJE_{Apport\ alimentaire\ normal}+)+0(ou\ 0.30)*(Q_{légumes+fruits}*C_{légumes+fruits})]$

Avec 0,95 = part d'arsenic réellement absorbée (Pichard, 2005),

0,2 ou 0,9 = facteur de biodisponibilité de l'arsenic dans les sols,

0,25 = part d'arsenic inorganique dans les aliments (Ravault, 2004),

0 ou 0,30 = pourcentage de légumes et fruits issus du jardin par rapport à la consommation totale de fruits et légumes (INCA 1999).

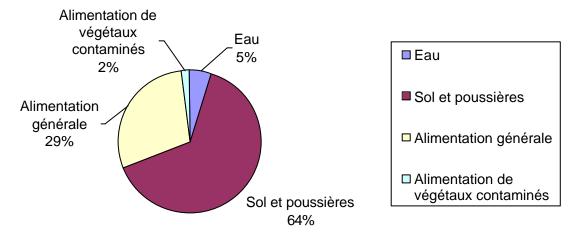
Ces calculs conduisent au Tableau 9 suivant, avec distinction, quand deux données sont proposées, des valeurs haute et basse.

Tableau 9 : Dose journalière d'exposition à l'arsenic des différents scénarii.

	Enfants		Adultes	
Vecteurs	DJE basse	DJE haute	DJE basse	DJE haute
Eau (µg/j)	2,4	2,8	8	11,6
Sol+poussières	9,1	36,4	3,3	26
(µg/j)	٥, ١			
Alimentation				
classique	1,3	15,5	109	163
(µg/j)				
Alimentation				
contaminée du	0	0,8	0	1,1
jardin				
(µg/j)				
DJE Totale	4,3	37,5	34,1	72
(µg/j)		07,0	5 1 , 1	12
DJE (µg/(kg*j))	0,19	1,6	0,47	0,99

Pour représenter l'apport des différents vecteurs et l'influence qu'ils ont sur la DJE finale, la Figure 8 présente la répartition dans le cas du scénario d'un enfant :

Figure 8 : Part des différents vecteurs d'exposition dans la dose journalière d'exposition d'un enfant



C'est donc bien l'ingestion de sols et de poussières qui constitue la voie principale d'intoxication pour les enfants. Il ne s'agit bien sûr ici que d'ordres de grandeur.

3.4 Caractérisation du risque

3.4.1 Effets non cancérigènes

Les quotients de danger (QD) pour les effets non cancérigènes sont calculés selon la formule ci-dessous :

QD=DJE/DJT

Où DJE est la dose journalière d'exposition en μg/(kg*j)

DJT est la dose journalière tolérable en µg/(kg*j). On prendra la valeur de 0,3 µg/(kg*j). Ce qui donne le Tableau 10 suivant :

Tableau 10 : Quotients de danger calculés pour les différents scénarii.

	Enfants		Adultes	
	DJE basse	DJE haute	DJE basse	DJE haute
QD pour l'exposition chronique ATSDR, US EPA, OEHHA	0,6	5,4	1,6	3,3

Un quotient de danger inférieur à 1 signifie que la population est théoriquement hors de danger. Dans les cas des scénarii avec DJE haute, les quotients de danger calculés sont supérieurs à 1. Même s'il ne s'agit que d'ordre de grandeur, ces scénarii aboutissent à un risque pour la population.

3.4.2 Effets cancérigènes

Les excès de risque individuel (ERI) pour les effets cancérigènes sont calculés selon la formule ci-dessous :

ERI=DJE*ERU*DE/TP

Avec DJE: Dose journalière d'exposition en mg/(j*kg)

ERU: excès de risque unitaire en (mg/(j*kg))⁻¹. On retient la valeur de 1,5 (mg/(j*kg))⁻¹.

DE : durée de l'exposition de la population en année

TP: temps de pondération pour la vie entière, à savoir 70 ans conventionnellement

Les calculs sont fait ici pour un an d'exposition, c'est-à-dire DE/TP= 1/70.

Tableau 11 : Excès de risques individuels suivant les différents scénarii

	Enfants		Adultes	
	DJE basse	DJE haute	DJE basse	DJE haute
ERI pour l'exposition				
chronique	4*10 ⁻⁶	3*10 ⁻⁵	1*10 ⁻⁵	2*10 ⁻⁵
ATSDR, US EPA,				

Un ERI de 10⁻⁵ signifie qu'une personne exposée durant la vie entière a une probabilité de 1 sur 100 000 de contracter un cancer lié à la pollution du site.

En France, la fixation des objectifs de dépollution est généralement basée sur ce risque de 10⁻⁵ correspondant aux recommandations de l'Organisation Mondiale de la Santé et déjà utilisé pour la fixation des normes de potabilité de l'eau (Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement, 1999).

Avec une durée d'exposition de un an seulement, les quatre scénarii envisagés conduisent à des ERI comparable à la valeur du risque dit « acceptable ».

En effectuant un calcul inverse, il est possible de déterminer le nombre d'années d'exposition nécessaire pour atteindre le repère d'excès de risque de 10⁻⁵, classiquement retenu comme seuil de décision. Pour les enfants, la durée d'exposition est comprise

entre 3 mois et demi et deux ans et demi. Pour les adultes, cette durée varie entre 6 mois et un an.

3.4.3 Discussion des résultats

Les résultats obtenus dans le cadre de cette évaluation des risques révèlent, en première approche, des quotients de danger trop élevés et des excès de risques non négligeables. Il faut alors pousser les calculs et affiner le modèle avant de pouvoir conclure fermement. À ce stade, il semble quand même cohérent de dire que la pollution arséniée des sols lorrains est inquiétante, et qu'elle mérite qu'on s'y intéresse.

Il convient de noter que ces résultats ont été obtenus après la formulation d'hypothèses nombreuses dont certaines ont une influence numérique forte. Dans tous les cas, leur vraisemblance est à discuter.

A) Dépassement de la VCI en région Lorraine

Puisque la valeur moyenne retenue pour la concentration en arsenic dans les sols lorrains dépassait la VCI dans les scénarii, il est cohérent d'aboutir en conclusion, au mieux à un excès de risque, ou tout au moins à soulever un problème inquiétant nécessitant de poursuivre et d'affiner les calculs. Les résultats de l'évaluation de risque menée ici sont donc cohérents.

B) Analyse des incertitudes

De nombreuses hypothèses ont dû être formulées tout au long de la démarche. Ces lacunes sont responsables d'incertitudes sur les résultats de la quantification des risques. Il est donc nécessaire d'essayer d'analyser ces hypothèses et de voir les conséquences des estimations sur les résultats finaux.

- La concentration moyenne en arsenic des sols a été retenue à 65 μg/g MS. Les variations de cette concentration sont grandes: le maximum mesuré est de 200 μg/g MS, ce qui induirait une multiplication par trois de la DJE finale. L'hypothèse de retenir une concentration moyenne pour représenter un phénomène géologique complexe est donc une hypothèse forte, la géologie n'étant pas une science exacte. Il aurait été sans doute plus correct de retenir la médiane des valeurs, mais ne disposant pas des données, il a fallu se contenter de cette valeur.
- La quantité de sol ingérée par les enfants est une valeur dont les variations possibles sont encore larges. Les valeurs retenues ici sont plutôt dans la partie haute des fourchettes admises. Le risque a donc été plutôt surestimé par ce choix.
- ➤ L'apport d'arsenic par la voie alimentaire est également extrêmement variable suivant les habitudes de chacun (variation jusqu'à un facteur 5). En prenant la valeur donnée au pays basque espagnol, la DJE finale est multipliée par 1,5. L'influence de ce facteur est donc très importante. De plus, il a été retenu dans cette étude deux valeurs de sources différentes pour les scénarii adulte et enfant, ce qui induit une très grande différence entre les deux valeurs.
- La part d'arsenic organique et inorganique est également très difficilement quantifiable, et pourtant fondamentale étant donné la différence de toxicité.
- ➤ Pour des raisons de simplicité, le sol et les poussières ont été regroupés comme une seule et même voie d'exposition en appliquant aux poussières la même concentration que celle trouvée dans les sols, sans preuve scientifique.

- La concentration d'arsenic dans les légumes d'un jardin contaminé est basée sur une seule étude, en considérant la moyenne des trois légumes-types représentatifs de l'ensemble des fruits et légumes. Il manque assurément d'autres études ici pour affiner les résultats. Cependant, l'influence sur le résultat final est faible.
- ➤ La proportion de légumes et de fruits venant du jardin par rapport à la consommation totale est également une variable dépendant beaucoup du contexte géographique notamment. En France, on retient une valeur moyenne de 30 %. Mais on peut facilement imaginer de grandes différences entre les régions. De plus, dans le calcul de la DJE liée à l'alimentation, il aurait fallu, en toute rigueur, retirer de la dose journalière apportée par l'alimentation générale la part liée aux fruits et légumes du jardin, puisqu'elle a été calculée séparément. Mais comme on ne dispose pas de cette information, cette soustraction n'a pas été faite, ce qui tend à majorer les résultats. Mais là encore, l'influence sur le résultat final reste négligeable. On se satisfera donc de ces valeurs.
- La voie par inhalation a été négligée car non répertoriée dans la littérature, ce qui tend à sous estimer les résultats.
- L'interaction avec d'autres substances n'a pas été envisagée. Le sélénium pourrait contribuer à réduire la toxicité de l'arsenic en facilitant son élimination. Il n'y a pour l'instant aucune autre évidence d'interactions avec d'autres métaux (INSPQ, 2002).

4 LES DIFFERENTS BIOMARQUEURS A L'ARSENIC ET LES RESULTATS ESCOMPTES DANS LE CAS LORRAIN

4.1 Quels biomarqueurs sont des indicateurs de la contamination humaine par l'arsenic ?

Les concentrations d'arsenic dans l'urine, les cheveux ou les ongles sont les indicateurs biologiques de l'exposition à l'arsenic les plus couramment utilisés.

4.1.1 L'urine

Les teneurs mesurées dans les urines sont le reflet d'une exposition récente (derniers jours). Les concentrations mesurées dans les urines comprennent à la fois l'arsenic inorganique et les métabolites (AMMA et ADMA). Mais l'ingestion ponctuelle d'aliments tels que des algues ou des mollusques peut entraîner une augmentation importante de l'ADMA mesuré, pouvant alors être interprétée faussement comme le résultat d'une exposition chronique à l'arsenic (INSPQ, 2002).

Les valeurs mesurées chez une population d'enfants (5/14 ans) considérée comme non exposée à l'arsenic sont de 4,0 µg/L [IC 95 %=3,5-4,5]. Chez les enfants de la région de Hettstedt, en Allemagne, considérée comme fortement polluée en arsenic en raison d'un passé industriel, les valeurs retrouvées après ajustement avec des paramètres de confusion sont de : 5,1 µg/L [IC 95 %=4,8-5,5]. Ces valeurs sont significativement supérieures aux valeurs témoins. Cependant, cette étude n'a pas pu aboutir car ces résultats n'ont pas été reproduits dans une autre région considérée également comme fortement polluée (Trepka,1996).

4.1.2 Les cheveux

Les cheveux sont considérés comme représentatifs d'une exposition passée à l'arsenic inorganique. Les concentrations y sont normalement inférieures à 1 μ g/g. Une contamination externe des cheveux est possible (prise de douche avec eau contaminée) et peut alors entraîner une surestimation de la dose d'arsenic. Il faut également noter qu'une augmentation de la concentration dans les phanères ne peut être mesurée que lorsque l'exposition est relativement importante (consommation d'une eau à 100 μ g/L au minimum). Compte tenu de ces limites, il est donc difficile d'évaluer l'exposition à de faibles dose d'arsenic par dosage biologique dans les cheveux (INSPQ, 2002).

4.1.3 Les ongles

Comme les cheveux, les ongles sont considérés comme des biomarqueurs pour une exposition chronique à l'arsenic. Des travaux épidémiologiques (Wilhelm, 2004) ont montré que la concentration d'arsenic dans les ongles des mains pouvait être associée significativement à une exposition à l'arsenic et que cette concentration était également liée à la concentration d'arsenic dans les sols et dans les poussières intérieures. L'auteur conclut que les ongles constituent un biomarqueur fiable pour l'exposition chronique à l'arsenic.

Pour les ongles des orteils, Hinwood (2003) a montré que pour une population exposée en moyenne à une concentration en arsenic de 92 μ g/g MS dans les sols, la concentration dans les ongles des pieds était en moyenne de 32,1 μ g/g, et que cette variable était mieux corrélée à la concentration en arsenic dans les sols qu'à celle mesurée dans les cheveux. Cependant, l'étude comprenait des risques de biais par une exposition externe non prise en compte.

4.2 Résultats pouvant être attendus dans le cas lorrain

Plusieurs études épidémiologiques menées sur des sites pollués industriellement à l'arsenic ont été menées. Si l'on fait l'hypothèse qu'il existe peu de différences entre l'exposition à l'arsenic naturel et anthropique, par comparaison, il est alors possible d'essayer de prévoir les ordres de grandeur des résultats d'une étude d'imprégnation de la population lorraine à l'arsenic. Le Tableau 12 expose ces différents données.

Tableau 12 : Comparaison des données environnementales et biologiques de différentes études d'imprégnation à l'arsenic.

Nom de l'étude	Pollissar, 1990	Diaz-Barriga, 1991	Gebel, 1998	Cas lorrain
[As] les sols (μg/g MS)	215	117 / 1396	2 / 605	65
DJE estimée (mg/j)		1 / 19,8		0,2 / 1,6
Type d'As mesuré	As total	As total	As inorganique	
[As]urine de la population exposée	11,4 ppb	69 / 594 µg/g créatinine	0,29 / 24 µg/24h	
par rapport aux témoins	2 fois supérieure	2 fois supérieure	2 fois supérieure	
[As]cheveux de la population exposée	3,7 µg/g	1,4 / 57,3 µg/g	0,069 µg/g	
par rapport aux témoins	10 fois supérieure	10 à 20 fois supérieure	2,5 fois supérieure	

La contamination naturelle à l'arsenic en Lorraine est nettement moins importante que dans les trois études présentées dans le tableau ci-dessus, puisqu'il s'agissait là de contamination artificielle due à l'homme (concentration jusqu'à 5 fois plus élevée). L'exposition est donc plus faible dans le cas de notre étude. Cependant, l'estimation de la DJE atteint presque celle l'ordre de grandeur de celle de Diaz-Barriga. Ce résultat s'explique par le fait que, malgré une exposition à l'arsenic plus importante, le taux d'ingestion de particules retenu est moindre.

On peut donc s'attendre dans le cas lorrain à des résultats similaires voire inférieurs :

- ➤ En résultats chiffrés pour l'arsenic urinaire, chacune des trois études a des unités différentes, mais toutes concordent pour trouver une concentration chez la population exposée deux fois supérieures à la normale,
- ➤ Pour les cheveux, dépendant du fait que l'on mesure l'arsenic total ou pas, là aussi, les résultats sont largement supérieurs pour la population exposée.

En conclusion, quel que soit le biomarqueur choisi (urine, cheveux ou ongles), il est légitime d'espérer trouver des résultats significatifs de contamination à l'arsenic. Mais il va de soi que ces résultats positifs ne seront obtenus que si la population exposée a été clairement identifiée préalablement.

5 CONCLUSION: PERTINENCE D'UNE ETUDE D'IMPREGNATION A L'ARSENIC TELLURIQUE DE LA POPULATION LORRAINE?

Le dépassement de la VCI fixée à 37 µg/g MS pour l'arsenic dans les sols sur 80 % des échantillons issus du bassin de Neuves-Maisons a été l'argument justifiant la mise en place de ce mémoire. L'arsenic en Lorraine est présent de façon naturelle dans les sols. Les objectifs de ce mémoire étaient de s'interroger sur la localisation exacte de cette contamination, son lien éventuel avec un phénomène géologique et alors tenter de l'expliquer, de savoir quel était le niveau de contamination exact des sols, d'essayer alors de quantifier l'exposition des populations et le risque sanitaire associé, pour finalement conclure sur la pertinence de la mise en place d'une étude d'imprégnation de la population lorraine à l'arsenic d'origine tellurique.

Réunissant les données fournies par plusieurs organismes, il a été possible de réaliser deux cartes sur la présence d'arsenic dans les sols en région Lorraine :

- dans le département des Vosges, un grand nombre de données existait déjà, le département ayant fait l'objet de nombreuses recherches minières. Une carte géographique de synthèse de ces informations permet donc de visualiser les communes présentant un problème vis-à-vis de l'arsenic tellurique. Le phénomène mis en jeu dans ce département est encore méconnu. Il s'agirait d'un phénomène géologique de grande ampleur, liée sans doute à la formation du massif vosgien. Ainsi, le phénomène étant hétérogène, les concentrations en arsenic relevées dans les sols sont très variables et il apparaît très difficile de faire des prédictions sur la présence ou non d'arsenic. De plus, d'un point de vue de santé publique stricte, il n'y a aucune raison que le phénomène s'arrête au département des Vosges, il concerne a priori aussi bien l'Alsace à l'est que la Franche-Comté au sud,
- dans le reste de la Lorraine, trois couches géologiques (le Bajocien, l'Aalénien et le Toarcien) présentent des concentrations en arsenic élevées. Là encore, il s'agit d'un phénomène géologique, c'est-à-dire variable. Une carte des communes traversées par ces couches a été réalisée. Cette carte réunit des communes pouvant contenir de l'arsenic dans les sols, et éventuellement, à des concentrations supérieures à la VCI. Elle concerne les quatre départements lorrains, mais ne s'arrête pas à leurs frontières : au nord, on devrait la continuer au Luxembourg et en Haute-Marne au sudouest.

Une évaluation des risques sanitaires a été menée grâce à ces données, tentant de quantifier l'exposition des populations. Prenant en compte l'exposition à l'arsenic par l'ingestion à la fois de particules de sols et de légumes contaminés ayant poussés sur la terre enrichie en arsenic, les conclusions de l'évaluation des risques sanitaires font apparaître des problèmes sanitaires pour la population exposée de façon chronique, nécessitant de pousser les investigations. Il convient de noter que cette évaluation des risques comporte de nombreuses incertitudes qui ont fait l'objet d'une discussion.

Enfin, la bibliographie ayant montré que certains bio-indicateurs de l'imprégnation comme la concentration en arsenic dans les cheveux étaient fiables pour une exposition chronique et significativement supérieure à la concentration moyenne pour une dose

journalière d'exposition similaire, il apparaît donc justifié de mettre en place une étude d'imprégnation de la population lorraine à l'arsenic d'origine tellurique, en ayant bien soin de :

- ➤ lancer une enquête de mesures, par exemple par le BRGM, des taux d'arsenic dans le sols pour affiner la carte d'exposition lorraine,
- vérifier ainsi la réelle présence d'arsenic dans les sols lorrains à des concentrations supérieures à la VCI dans des zones que l'on délimitera,
- choisir un ensemble cohérent de communes ou parties de commune faisant l'objet de l'étude d'imprégnation,
- continuer l'étude bibliographique des biomarqueurs pour choisir lequel retenir,
- anticiper les résultats de cette étude en réfléchissant aux consignes données à la population en cas d'imprégnation mesurée chez la population exposée,
- d'un point du vue éthique, s'assurer qu'en cas de résultats montrant un imprégnation des populations, la médecine est bien capable d'apporter des traitements médicaux aux malades, et à partir de quel(s) seuil(s).

Cet avis donné ici ne prend en compte que les données scientifiques du problème. Or, le problème de l'arsenic va au-delà. Dans le ressenti de la population générale, l'arsenic fait peur. Ainsi, le choix de mettre en place une telle étude dépend aussi d'autres facteurs, comme le ressenti social et les enjeux politiques.

En novembre 2004, le Directeur Général de la Santé a saisi l'institut de Veille Sanitaire (InVS) afin de procéder à «une expertise du rapport du rapport du BRGM relatif à la présence d'éléments métalliques dans les sols (BRGM/RP-53128FR de Baubron, 2004) en vue de proposer la réalisation d'éventuelles études complémentaires nécessaires ». Dans sa réponse du 24 juin 2005, l'InVS formule deux recommandations :

- Évaluation du respect des seuils réglementaires de qualité des eaux destinés à la consommation humaine
- Conduite d'une étude d'imprégnation biologique en arsenic des populations présentes sur le bassin de Neuves-Maisons, et au-delà si justifié.

Interrogé sur les raisons du lancement de cette étude, l'InVS a deux objectifs principaux :

- Un objectif sanitaire, puisque même si les concentrations sont peu élevés, la population exposée est grande,
- ➤ Un objectif de recherche. En effet, il existe peu de données sur les doses internes réelles en arsenic, et il n'existe pas encore de législation définissant un seuil interne permettant de déclencher une prise en charge médicale des malades, comme c'est le cas lors des plombémies. Un telle enquête permettrait de trouver ce seuil.

Ainsi, les résultats de ce mémoire confortent bien les conclusions de l'InVS. De plus, la réflexion sur la présence d'arsenic et la carte fournie pourront permettre à la fois d'élargir la zone d'étude, comme suggéré par l'InVS, qui initialement ne concernait que Neuves-Maisons mais également de le cerner géographiquement uniquement aux listes des communes données en annexe.

BIBLIOGRAPHIE

ADVANCED CHEMISTRY DEVELOPMENT. Bioconcentration Factor (BCF), 2004.

Site Internet : http://www.acdlabs.com/products/phys_chem_lab/logd/bcf.html

AFSSA. Enquête INCA (enquête individuelle et nationale sur les consommations alimentaires), Graphiques et tableaux, 1999.

Site Internet: http://www.afssa.fr/ftp/afssa/basedoc/Rapinca.pdf

AFSSA. Fiche 5: Evaluation des risques sanitaires liés au dépassement de la limite de qualité de l'arsenic dans les eaux destinées à la consommation humaine. Extrait du rapport : "Evaluation des risques sanitaires liés aux situations de dépassement des limites et références de qualité des eaux destinées à la consommation humaine", 2004.

AUBERTIN G., BONNARD R. Comment estimer l'exposition d'une population? Département Evaluation, Modélisation, Analyse des risques de l'INERIS, 1995.

BARANGER P. L'arsenic. Service Environnement et Procédés, BRGM, 2004.

BARBIER J. Occurrences naturelles d'arsenic en France: roches, sols et milieux associés. INIST, CNRS,2001.

BAUBRON J.C., DURENDEAU B., FOURNIGUET G., KIEFFER C .Première évaluation de la contamination des sols en plomb et autres éléments métalliques du secteur de Neuves-Maisons (Meurthe-et-Moselle). BRGM/RP-53128-FR, 2004.

BERTIN P.N, et al. Métabolisme de l'arsenic chez les procaryotes : de la résistance à la détoxication. GDR2909, 2004.

Site Internet: http://gdr2909.u-strasbg.fr/index2.asp

BONNARD R., HULOT C., LEVEQUE S. Méthode de calcul des Valeurs de Constat d'Impact dans les sols. Ministère de l'aménagement du Territoire et de l'Environnement, Direction des risques chroniques, INERIS DRC-01-25587/DESP-R01, 2001.

BOULANGER P., WILHELM E. Interprétation des résultats de la prospection géochimique multiéléments de la coupure Remiremont. Inventaire-Divison Paris-Vosges, Zone G. BRGM S.G.R / Lorraine-Nancy, n°S/74, 1977.

CONSEIL DEPARTEMENTAL D'HYGIENE DE MOSELLE. Bilan relatif à la teneur en arsenic dans les eaux destinées à la consommation humaine, 1999.

DARMENDRAIL D., BAIZE J., BARBIER J., FREYSSINET P., MOUVET C., SALPETEUR I., WAVRER P. Fonds géochimiques naturel : Etat des connaissances à l'échelle nationale. BRGM/RP-50158-FR, 2000.

DIAZ-BARRIGA F., et al. Arsenic and Cadmium exposure in children living near a smelter complex in San Luis Potosi, Mexico. *Environmental research 62*, 242-250, 1993.

DE GIUDICI P. Demande d'autorisation d'exploiter de l'Unité de Valorisation des Energies Renouvelables et de la Biomasse (UVERB)° de Laneuville-devant-Nancy (54), 2004.

DICTOR M.C, BARANGER P., CHERY L., MICHEL K., BARBIER J., CLOZEL B., TOUZE S., LE GALL A.C., BROSSELIN P. Synthèse des travaux de R&D en France (1999-2003) sur la thématique Arsenic. BRGM/RP-53252-FR, 2004.

EUROPEAN EXPOSURE FACTORS SOURCEBOOK, 2005.

Site Internet: http://www.ktl.fi/expofacts/

GEBEL T.W., et al. Human Biomonitoring of arsenic and antimony in case of elevated geogenic exposure. *Environmental Health Perspectives 106*:33-39,1998.

GOOLSBY D. A., et al. Geochemistry of Soils and Shallow Ground Water, with emphasis on Arsenic and Selenium, in part of the Garrison Diversion Unit, North Dakota, United States, 1985-87. *US Geological Survey*. Water-Resources Investigations Report 89-4104, 1987.

GOURIER-FRERY et al. Aluminium : Quels risques pour la santé ? Synthèse des études épidémiologiques, Volet épidémiologique de l'expertise collective InVS-Afssa-Afssaps, 2004.

GOUVERNEMENT DE L'ONTARIO, Canada. L'arsenic dans l'environnement, 2005.

Site Internet: http://www.ene.gov.on.ca/cons/3792f.htm

GRILLET J.P et al. Exposition à l'arsenic en viticulture : apport de la biométrologie. INRS. Document pour le Médecin du Travail, 2004.

Site Internet : http://www.inrs.fr/inrs-pub/inrs01.nsf/IntranetObject-accesParReference/TF%20136/\$File/TF136.pdf

HAMONT B. Note sur la recherche d'arsenic dans les eaux d'alimentation du département de la Moselle. BRGM SGR / Lorraine-Nancy, bibliothèque n°C/34, 1989.

HÄUSSERMANN A. L'arsenic dans les eaux et les sols de l'ancien site minier de Salanfe (Valais), 2000.

Site Internet: http://www-sst.unil.ch/publications/diplomes 00.htm#haussermann

HIGGINS I.T.T, et al. Arsenic exposure and respiratory cancer in a cohort of 8 044 Anaconda smelter workers. A 43-year follow-up study. *Chemical Manufacturer's Association*, 1986.

HINWOOD A. L., et al. Hair and toenail arsenic concentration of residents living in areas with high environmental arsenic concentration. Environmental Health Perspectives.

Department of Epidemiology and Preventive Medicine, Monash University, Victoria, Australia, 2003.

HSUEL Y.M, et al. Multiple risk factors associated with arsenic induced skin cancer: effects of chronic liver disease and malnutritional status. *Br J Cancer*, 71, 109-114, 1995.

IARC. Arsenic and Arsenic Compounds (Group 1), 2005. Site Internet: http://www-cie.iarc.fr/htdocs/monographs/suppl7/arsenic.html

INSTITUT NATIONAL DE SANTE PUBLIQUE DU QUEBEC (INSPQ). Fiche Arsenic. Groupe scientifique sur l'eau, 2002.

LAMOTTE C. Interprétation géologique des analyses baryum et arsenic du Bas-Rhin. BRGM/RR-40388-FR, 1998.

LAPERCHE V., BODENAN F., DICTOR M.C et BARANGER P. Guide méthodologique de l'arsenic, appliqué à la gestion des sites et des sols pollués. BRGM/RP-52066-FR, 2003.

LASALLE J.L., Conséquence sanitaires de la présence de lindane dans l'eau de distribution de la commune de Belgentier. Cellule interrégionale d'épidémiologie Sud, 2005.

LENOBLE V. Elimination de l'arsenic pour la production d'eau potable : oxydation chimique et adsorption sur des substrats solides innovants. Thèse pour le grade de docteur de l'université de Limoges, 2003.

Site Internet: http://www.unilim.fr/theses/2003/sciences/2003limo0011/lenoble.pdf

LIVERTOUX M. H. Métaux toxiques, toxiques non médicamenteux. Faculté de pharmacie de Nancy, Cours de 4^{ième} année, 2005.

MERLEN R.. Etude de sol et de végétaux sur deux sites pilotes de Meurthe-et-Moselle. Biomonitor, Rapport final 04-RA-10-RM-04, 2004.

MINISTERE DE L'AMENAGEMENT DU TERRITOIRE ET DE L'ENVIRONNEMENT. Gestion des sites (potentiellement) pollués. Version 2. BRGM éditions, 2000.

MINISTERE DE L'AMENAGEMENT DU TERRITOIRE ET DE L'ENVIRONNEMENT Sites et sols pollués. Principes de fixation des objectifs de réhabilitation, 1999.

Site Internet: http://rese.intranet.sante.gouv.fr/santenv/interven/solpolu/reg/c_101299.htm

MINISTERE DE L'ENVIRONNEMENT CANADIEN. Service des lieux contaminés. Evaluation des teneurs de fond naturelles dans les sols, 2004.

MINISTERE DE l'INDUSTRIE ET DE LA RECHERCHE, Service géologique national. Carte géologique de la France au 1/50 000.

Cartes n° 88 Montmédy-Francheval, n°111 Stenay, n°112 Longuyon-Gorcy, n°113 Longwy-Audun-le-Roman, n°114 Thionville-Waldwisse, n°137 Briey, n°138 Uckange, n°140 Forbach, n°163 Chambley, n°164 Metz, n°167 Bitche-Walschbronn, n°168-Lembach, n° 193 Pont-à-Mousson, n°194 Nomény, n° 195 Château-Salin, n° 229 Toul, n° 230 Nancy, n°232 Sarrebourg, n°233 Saverne, n°267 Vézelise, n°270 Cirey-sur-Vezouze, n°302 Neufchâteau, n°303 Châtenois, n°306 Saint-Dié; n°337 Bourmont, n°338 Vittel, n°341 Gérardmer, n°375 Plombières-les-bains, n°376 Remiremont, n°377 Munster et n°476 Ferrette.

MINISTRY FOR THE ENVIRONMENT OF NEW-ZEALAND. Health and environmental guidelines for selected timber treatment chemicals, 1997.

Site Internet: http://www.mfe.govt.nz/publications/hazardous/timber-guide-jun97/chapter-5-jun97.pdf

NAIRAUD D. Données d'exposition de la population française aux résidus de pesticides, plomb, cadmium, arsenic et radionucléides par la voie alimentaire. *Le Dossier, encart de « notre alimentation »*, 2000.

PFEIFER H.R et al. Natural arsenic-contamination of surface and ground waters in Southern Switzerland (Ticino), 2002.

Site Internet: http://www.angewandte-geologie.ch/Dokumente/Archiv/Vol71/7_1Pfeifer-Arsenic.pdf

PICHARD A., BISSON M., HOUEIX N., HULOT C., LACROIX G., LEFEVRE J.P., LEVEQUE S., MAGAUD H., MORIN A. Arsenic et ses dérivés inorganiques. INERIS – Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, 2005.

POLLISSAR, et al. Pathways of human exposure to arsenic in a community surrounding a copper smelter. *Environmental research* 53, 29-47, 1989.

PROVINCE DU NOUVEAU-BRUNSWICK, Canada.. Arsenic. Fiche d'information destinée au public, 1996.

Site Internet: http://www.gnb.ca/0053/belledune/pdf/arsenicFR.pdf

SALVIAC G. Synthèse des données géochimiques existantes des sols lorrains. Rapport dans le cadre d'un stage effectué à l'ADEME LORRAINE, 1999.

SANDSTROM A., et al. Cancer incidence among male salaried employee at a smeltery in northern sweden. *Acta Oncol*, 32, 9-14,1993

SANJUAN B., et al. Caractérisation des aquifères contaminés par de l'arsenic dans le Haut-Rhin. Rapport final. Commanditaire : Agence de l'eau Rhin-Meuse, Ministère de l'industrie, DDASS du Haut-Rhin. BRGM/RR-39799-FR, 1997.

SCHMIT V. L'arsenic entre le val Colla et le val d'Isone (Tessin). Etude hydrogéologique et pédologique, 2000.

Site Internet: http://www-sst.unil.ch/publications/diplomes_00.htm

STATISS 2005 Lorraine. STATistiques et Indicateurs de la Santé et du Social. DRASS de Lorraine, Service statistique, 2005.

RAVAULT C., et al. Exposition chronique à l'arsenic hydrique et risques pour la santé. Bilan des données épidémiologiques. Évaluation quantitative des risques sanitaires en Auvergne. Institut de Veille Sanitaire, 2004.

Site Internet: http://www.invs.sante.fr/publications/2003/arsenic/rapport_arsenic.pdf

RÜHLING Å., STEINES E. Rapport succinct du Centre de coordination du Programme international concerté relatif aux effets de la pollution atmosphérique sur la Végétation naturelle et les cultures (PIC-Végétation). Organe exécutif de la convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance, 2003.

http://www.unece.org/env/documents/2003/eb/wg1/eb.air.wg1.2003.8.f.pdf

TREPKA M.J., et al. Arsenic burden among children in industrial areas of eastern Germany. Institut d'épidémiologie de Neuherberg. *The Science of the Total Environment*, 1995.

TSENG W.P. Effects and dose-reponse relationships of skin cancer and blackfoot disease with arsenic. *Environmental Health Perpectives*,19 109-119,1977.

US ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. Child-specific Exposure factors handbook. National center for Environmental Assessment. Washington, DC. EPA/600 P-00/002B, 2002.

Site Internet: http://fn.cfs.purdue.edu/fsq/WhatsNew/KidEPA.pdf

WILHEM M., et al. Comparison of arsenic levels in fingernails with urinary As species as biomarkers of arsenic exposure in residents living close to a coal-burning power plant in Prievidza, Slovakia. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, 2004.

Annexes

Annexe 1: Liste des communes la	orraines traversées pa	ar les couches o	du bajocien, de
l'aalenien et du toarcien			52
Annexe 2: Liste des communes vo	osgiennes ayant fait l'	'objet de l'étude	statistique avec
les couleurs associées			55

Annexe 1 : Liste des communes lorraines traversées par les couches du bajocien, de l'aalenien et du toarcien

ABONCOURT BLENOD-LES-PONT-A-MOUSSON CUSTINES
AGINCOURT BOISMONT CUTY

ALGRANGE BOOZVILLE DIFFERDANGE
ALLONDRELLE BOUXIERES-AUX-CHENES DOLAINCOURT
AMANCE BOUXIERES-AUX-DAMES DOLCOURT

Amblimont Bouxieres-sous-Froidmont Dommarie-Bulmant Angevillers Brechaincourt Dommartemont

AOUZE BREHAIN-LA-VILLE DOMMARTIN-SUR-VRAIN

ARNAVILLE BRONVAUX DORNOT AROFFE BUDERSBERG **DUDELANGE** ARRY BURANGE **ECOUVIEZ** ARS-SUR-MOSELLE BURE LA FORGE EDANGE BURE-LA-VILLE ATTIGNEVILLE EHLERANGE AUDUN-LE-ROMAN CANTEBONNE Entrange

AUDUN-LE-TICHE CERTILLEUX EPIEZ-SUR-CHIERS
AULNOIS CHALIGNY ERROUVILLE
AUMETZ CHAMPEY-SUR-MOSELLE ERZANGE

AUMONT CHAMPIGNEULLES ESCH SUR ALZETTE
AUTIGNY-LA-TOUR CHAOUILLEY ESCHERANGE
AUTREVILLE-SUR-MOSELLE CHARENCY ESSEY-LES-NANCY

CHARENCY-VEZIN

EUILLY-ET-LOMBUT

CHATEL ST GERMAIN AVRIL EULMONT BACOURT **CHATENOY EULMONT** BAINVILLE-SUR-MADON CHAUVENCY-LE-CHATEAU FAMECK CHAUVENCY-ST-HUBERT BALLEVILLE **FAULX** BAN ST MARTIN **CHAVIGNY FAVIERES** BARVILLE CHEF-HAUT **FECOCOURT** BASLIEUX **CHENIERES** FERMONT BATTE CIRCOURT-SUR-MOUZON **FEVES** BATTIGNY CLOUANGE **FILLIERES**

AVIOTH

BAYONVILLE-SUR-MAD COLMEY FLABEUVILLE
BAZAELLES CONS-LA-GRANDVILLE FLASSIGNY

BAZEILLES-SUR-OTHAIN CORNY-SUR-MOSELLE FLEVILLE-DEVANT-NANCY

BEAUFREMONT COSNES ET ROMANS FONTOY
BELLEVILLE COTRE FRANCHEPRE
BELVAUX COURCELLES FRESNOIS

BEUVANGE SOUS ST-MICHEL COURCELLES-SOUS-CHATENOY FRESNOIS-LA-MONTAGNE

BEUVANGE-SOUS-JUSTEMONT COUVREUX FROUARD
BEUVEZIN CREPEY GELAUCOURT
BEZAUMONT CRUSNES GEMONVILLE
BIEVRES CUSSIGNY GENDREVILLE

GENIBOIS LAY-ST-CHRISTOPHE MONTIGNY-SUR-CHIERS

GERMINY LE BAS LANDAVILLE MONTLIBERT
GEZONCOURT LE HAUT LANDVILLE MONTMEDY
GONAY LEMMECOURT MONTQUINTIN

GONCOURT LES MENILS MOREY

GORCY LESSY MORFONTAINE
GORZL LEXY MORLANGE

GOVILLER LIOCOURT MOULINS-LES-METZ
GRANDCOURT LIVERDUN MOULIN-ST-HUBERT

GRAVELOTTE LONGEVILLE MOUSSON
GRIMONVILLER LONGLAVILLE MOUZON

GUGNEY LONGUYON MOYEUVRE-GRANDE HARCHECHAMP LONGWY MOYEUVRE-PETITE

HARNONCOURT LORRY-MARDIGNY NANCY
HARREVILLE-LES-CHANTEURS LUDRES NEPVANT
HAUCOURT-MOULAINE MACHINE NEUDORF
HAYANGE MACONCOURT NEUFCHEF

HEMINVILLE MAIDIERES NEUVES-MAISONS
HERSERANGE MAIZIERES NIEDERKORN
HOMECOURT MALANCOURT-LA- NILVANGE
HOUDEMONT MONTAGNE NONDKEIL

HOUDLEMONT MALANDRY NORROY-LES-PONT-A-MOUSSON

HOUEVILLE MALLELOY NORROY-LE-VENEUR
HUQUESVILLE MALZEVILLE NOVEANT-SUR-MOSELLE

HUSSIGNY-GOBRANGE MARANGE-SILVANGE OBERKORN
IMBRECOURT MARBACHE OEUTRANGE

INOR MARDIGNY OLIZY-SUR-CHIERS

JAINVILLOTTE MARICULLES ONVILLE
JAULNY MARON OTHE
JEANDELAINCOURT MARSPICH OTTANGE

JEZAINVILLE MARTHEMONT PAGNY-SUR-MOSELLE

JOEUF MARTINCOURT PIEDMONT

JOPPECOURT MAXEVILLE PIERRE-LA-TREICHE

MEDONVILLE PIERREPONT JUSSY JUVILLE MERCY-LE-BAS **PIERREVILLERS** KANFEN MESSEIN **PLAPPEVILLE PLESNOIS** KAYL Metz. KNUTANGE METZANGE **PLEUVEZAIN** LA MALMAISON **MEXY POMPEY** LAITRE-SOUS-AMANCE **MILLERY POMPIERRE**

LAIX MOIVRONS PONT-A-MOUSSON
LAMORTEAU MOLVANGE PONT-ST-VINCENT

LAMOUILLY MONCHEUX PRAYE
LANDREMONT MONDERCANGE PRENY

LANGENGRUND MONT SAINT-MARTIN PREVOTCOURT

LAXOU MONTENOY PULNEY

RAINVILLE ST JEAN VELONES
RANGUEVAUX ST JULIEN-LES-GORGE VELOSNES

REBEUVILLE ST MAX VERNEUIL-GRAND
REDANGE ST NICOLAS EN FORET VERNEUIL-PETIT

REHON ST PAUL VEZIN
REMBERCOURT STE GENEVIEVE VICHEREY

REMELANGE STE RUFFINE VIGNEUL-SOUS-MONTMEDY

REMOVILLE ST-MARD VILCEY-SUR-TREY

REVEMONT ST-PANCRE VILLERUPT
ROCHONVILLERS ST-SUPPLET VILLANCY
RODANGES TELLANCOURT VILLARS

ROLLAINVILLE TETANGE VILLE-AU-MONTOIS
ROMAIN THELOD VILLE-AU-VAL

ROMBAS THEY VILLECEY-SUR-MAD

ROSSELANGE THIL VILLECLOYE

ROUVRES-LA-CHETIVE THONNE-LA-LONG VILLECY-SUR-MAD VILLE-HOUDLEMONT **ROZERIEULLES** THONNE-LES-PRES RUETTE THONNE-LE-THIL VILLERS-LA-MONTAGNE VILLERS-LES-MOIVRONS RUMELANGE THONNELLE RUSSANGE THUILLEY-AUX-GROSEILLES VILLERS-LES-NANCY **SARTES** TIERCELET VILLERS-LES-ROMBAS SAULNES **TIGNOMONT** VILLERS-SOUS-PRENY

SAULNY TILLEUX VILLERUPT
SAULXEROTTE TINCRY VILLETTE
SAXON-SION TORGNY VIOCOURT
SCHIFFANGE TRAMONT ST ANDRE VITERNE

SCY-CHAZELLES TRAMONT-EMY VITRY-SUR-ORNE SELAINCOURT TRAMONT-LASSUS VITTONVILLE

SEMECOURT UGNY VIVIERS-SUR-CHIERS

SEREMANGE-ERZANGE URVILLE VOLKRANGE
SERRIERES VANDELAINVILLE VOLMERANGE

SERROUVILLE VANDELEVILLE VOUXEY
SEXEY-AUX-FORGES VANDIERES VRECOURT
SIGNY-MONTLIBERT VAUDEMONT WARNIMONT
SOLEUVRE VAUX WAVILLE
SONCOURT VAUX-LES-MOUZON XOCOURT

Annexe 2 : Liste des communes vosgiennes ayant fait l'objet de l'étude statistique avec les couleurs associées

ALLARMONT	jaune clair	FRESSE-SUR-MOSELLE	rouge
ANOULD	orange	GEMAINGOUTTE	rouge
ARRENTES-DE-	jaune	GERARDMER	orange
CORCIEUX		GERBAMONT	rouge
AUMONTZEY	rouge	GERBEPAL	jaune
BAINS-LES-BAINS	jaune	GIRMONT-VAL-D'AJOL	rouge
BAN-DE-LAVELINE	orange	GRANDRUPT	orange
BAN-DE-SAPT	rouge	GRANGES-SUR-VOLOGNE	jaune
BAN-SUR-MEURTHE	rouge	GRUEY-LES-SURANCE	jaune
BARBEY-SEROUX	jaune	HADOL	rouge
BASSE-SUR-LE-RUPT	rouge	HARSAULT	jaune
BEAUMENIL	jaune	HAUTMOUGEY	orange
BELLEFONTAINE	orange	HENNEZEL	jaune
BELVAL	orange	HERPELMONT	jaune
BERTRIMOUTIER	orange	HURBACHE	orange
BUSSANG	orange	JARMENIL	jaune clair
CHAMPDRAY	orange	JUSSARUPT	jaune
CHAMP-LE-DUC	orange	LA BRESSE	jaune
CHATAS	rouge	LA CHAPELLE-AUX-BOIS	orange
CHENIMENIL	jaune clair	LA CHAPELLE-DEVANT-	orange
CLEURIE	rouge	BRUYERES	
COINCHES	rouge	LA CROIX-AUX-MINES	orange
COLROY-LA-GRANDE	rouge	LA FORGE	jaune
COMBRIMONT	rouge	LA GRANDE-FOSSE	jaune
CORCIEUX	orange	LA HAYE	orange
CORNIMONT	orange	LA HOUSSIERE	rouge
DENIPAIRE	orange	LA NEUVEVILLE-DEVANT-	orange
DEYCIMONT	jaune	LEPANGES	
DOCELLES	jaune clair	LA PETITE-FOSSE	orange
DOMMARTIN-LES-	rouge	LA PETITE-RAON	orange
REMIREMONT		LA VOIVRE	rouge
ELOYES	jaune	LAVAL-SUR-VOLOGNE	jaune
ENTRE-DEUX-EAUX	rouge	LAVELINE-DU-HOUX	rouge
ETIVAL-CLAIREFONTAINE	jaune	LE BEULAY	jaune clair
FAUCOMPIERRE	jaune clair	LE CLERJUS	jaune
FAYS	jaune clair	LE MAGNY	jaune
FERDRUPT	rouge	LE MENIL	rouge
FIMENIL	jaune	LE MONT	jaune
FONTENOY-LE-CHATEAU	jaune	LE PUID	orange
FRAIZE	orange	LE ROULIER	jaune
FRAPELLE	orange	LE SAULCY	jaune

LE SYNDICAT	rouge	REMOMEIX	orange
LE THILLOT	rouge	ROCHESSON	rouge
LE THOLY	orange	RUPT-SUR-MOSELLE	rouge
LE VAL-D'AJOL	rouge	SAINT-AME	rouge
LE VALTIN	orange	SAINT-DIE	orange
LE VERMONT	orange	SAINT-ETIENNE-LES-	rouge
LEPANGES-SUR-	jaune	REMIREMONT	_
VOLOGNE		SAINT-JEAN-D'ORMONT	rouge
LES VOIVRES	jaune	SAINT-LEONARD	rouge
LESSEUX	rouge	SAINT-MAURICE-SUR-	rouge
LIEZEY	jaune	MOSELLE	
LUBINE	orange	SAINT-MICHEL-SUR-	orange
LUSSE	rouge	MEURTHE	
LUVIGNY	jaune	SAINT-NABOR	rouge
MANDRAY	rouge	SAINT-STAIL	orange
MENIL-DE-SENONES	rouge	SAPOIS	rouge
MONTMOTIER	jaune	SAULCY-SUR-MEURTHE	rouge
MOUSSEY	jaune	SAULXURES-SUR-	rouge
MOYENMOUTIER	jaune	MOSELOTTE	
NAYEMONT-LES-FOSSES	orange	SENONES	jaune
NEUVILLERS-SUR-FAVE	orange	TAINTRUX	rouge
NOMPATELIZE	orange	TENDON	jaune
PAIR-ET-GRANDRUPT	orange	THIEFOSSE	rouge
PLAINFAING	orange	TREMONZEY	jaune
PLOMBIERES-LES-BAINS	orange	VAGNEY	rouge
POUXEUX	jaune clair	VECOUX	rouge
PREY	rouge	VENTRON	jaune
PROVENCHERES-SUR-	orange	VEXAINCOURT	jaune
FAVE		VIEUX-MOULIN	rouge
RAMONCHAMP	rouge	WISEMBACH	rouge
RAON-AUX-BOIS	orange	XAMONTARUPT	jaune clair
RAON-L'ETAPE	jaune	XERTIGNY	orange
RAVES	orange	XONRUPT-LONGEMER	orange
REHAUPAL	rouge		
REMIREMONT	rouge		