



ENSP
ÉCOLE NATIONALE DE
LA SANTÉ PUBLIQUE

RENNES

Ingénieur du génie sanitaire

Promotion 2004

**Pertinence et faisabilité d'utilisation
de CalTOX 4.0 pour évaluer les
expositions par ingestion de métaux :
*Exemple de l'arsenic émis par une fonderie
de métaux ferreux***

Présenté par :

Sylvie NGUYEN

Ingénieur ENITIAA

Lieu de stage :

OTE Ingénierie Lorraine, Metz

Accompagnant professionnel :

M. Thierry BARD

Référent pédagogique :

M. Philippe GLORENNEC

Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui de près ou de loin, ont contribué au bon déroulement de ce stage.

Je remercie plus particulièrement :

Messieurs Jean-Francis BOSCATO, chef du département Environnement d'OTE Ingénierie, et Thierry BARD, chef d'agence, pour m'avoir accueillie au sein de leur société et pour m'avoir donné l'opportunité de travailler sur ce sujet.

Monsieur Philippe GLORENNEC, enseignant-chercheur à l'ENSP, pour ses précieux conseils et son encadrement.

Monsieur Jean CARRÉ, enseignant-chercheur à l'ENSP, pour ses indications pertinentes.

Aline, France, Lionel et Nathalie pour leur sympathie et l'ambiance apportée à l'agence de Metz. Merci de m'avoir fait découvrir la «chocolatine mosellane » avec le nappage de sucre sur le dessus !

Sommaire

REMERCIEMENTS.....
LISTE DES SIGLES UTILISÉS.....
LISTE DES TABLEAUX.....
RÉSUMÉ.....
SUMMARY.....
INTRODUCTION.....	1
CONTEXTE ET OBJET DU MÉMOIRE.....	3
1.1 Cadre réglementaire des ICPE.....	3
1.1.1 Evaluation des risques dans le Volet Sanitaire de l'Etude d'Impact	3
1.1.2 Étape d'évaluation de l'exposition.....	4
1.2 Modélisation de l'exposition par un logiciel multimédia.....	4
1.3 Rejets atmosphériques de métaux et exposition de la population.....	5
1.4 Objectif du mémoire.....	5
MATERIEL ET MÉTHODE.....	6
2.1 Présentation du modèle utilisé : CalTOX 4.0	6
2.1.1 Compartiments environnementaux	6
2.1.2 Modélisation des transferts environnementaux du polluant	7
2.1.3 Calcul des doses d'exposition (DE)	7
2.1.4 Atouts et limites de CalTOX.....	7
2.1.5 Données d'entrée requises	9
2.2 Faisabilité d'utilisation de CalTOX pour modéliser l'exposition par ingestion d'un métal.....	10
2.2.1 Choix de l'arsenic comme polluant pour le mémoire.....	10
2.2.2 Caractéristiques de la source de pollution	12
2.2.3 Choix de l'ingestion comme voie d'exposition	12
2.3 Origine des valeurs des paramètres d'entrée.....	14
2.3.1 Sources bibliographiques	14
2.3.2 Obtention de différentes valeurs pour un paramètre	15
2.3.3 Choix des valeurs	15

2.4 Analyse de sensibilité	16
2.4.1 Variabilité et incertitude des paramètres	16
2.4.2 Méthodes disponibles pour effectuer une étude de sensibilité.....	16
2.4.3 Critères de sélection des paramètres sensibles	17
2.5 Hypothèses retenues pour les simulations réalisées.....	18
RÉSULTATS.....	19
3.1 Résultats de l'analyse de sensibilité	19
3.1.1 Paramètres sensibles	19
3.1.2 Hiérarchisation des paramètres sensibles	20
3.1.3 Résultats de l'analyse « paramètre par paramètre »	21
3.2 Description des paramètres sensibles pour l'ingestion.....	21
3.2.1 Paramètres physico-chimiques décrivant le polluant étudié	21
3.2.2 Paramètres du site.....	24
3.2.3 Paramètres d'exposition	33
3.3 Détermination des vecteurs d'expositions prépondérants à l'ingestion d'arsenic.....	37
3.4 Impact de la modification de la valeur de certains paramètres.....	38
3.4.1 Impact de la modification des valeurs des paramètres du site sur l'exposition.....	38
3.4.2 Impact de la modification de la valeur de 'd_s'sur l'exposition	39
3.4.3 Impact d'un apport d'eau au niveau du site sur l'exposition	40
3.4.4 Impact de l'utilisation d'eau pour l'irrigation sur l'exposition	41
3.4.5 Impact des quantités d'aliments ingérés et de la part d'autoconsommation.....	41
DISCUSSION	41
4.1 Hypothèses de CalTOX.....	41
4.1.1 Hypothèses de CalTOX sur les paramètres d'entrée	41
4.1.2 Hypothèses de CalTOX sur les mécanismes de transfert de la pollution	42
4.2 Méthodes d'analyse de sensibilité.....	43
4.2.1 Limites du module d'analyse de sensibilité de CalTOX.....	43
4.2.2 Limites de la méthode du calcul de l'indice de sensibilité.....	43
4.3 Limites des méthodes d'obtentions des plages de variation acceptables pour les paramètres.....	43
4.4 Paramètres à renseigner avec précision pour l'arsenic.....	44
4.5 Facilité de renseignement des paramètres.....	47
4.5.1 Sources d'information sur les habitudes de consommation	47
4.5.2 Accessibilité des autres paramètres et recommandations.....	47

4.6 Généralisation et validation de l'outil	48
4.6.1 Extrapolation à d'autres métaux.....	48
4.6.2 Utilisation de CalTOX pour différentes cibles humaines	48
4.6.3 Point de vue de l'INERIS sur l'utilisation de CalTOX.....	49
4.6.4 Validation de l'outil.....	49
CONCLUSION	51
BIBLIOGRAPHIE.....	53
LISTE DES ANNEXES.....	I

Liste des sigles utilisés

AFSSA : Agence Française de Sécurité Sanitaire des Aliments
ATSDR : Agency for Toxic Substances and Disease Registry
BCF : Bioconcentration Factor
BRGM : Bureau de Recherches Géologiques et Minières
CIDIL : Centre Interprofessionnel de Documentation et d'Information Laitières
CIV : Centre d'Information des Viandes
CNIEL : Centre National Interprofessionnel de l'Économie Laitière
CREDOC : Centre de Recherche pour l'Étude et l'Observation des Conditions de Vie
CV : Coefficient de Variation
DIREN : Direction Régionale de l'Environnement
DE : Dose d'Exposition
DRIRE : Direction Régionale de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement
DTSC : Department of Toxic Substances Control
ERI : Excès de Risque Individuel
ERU : Excès de Risque Unitaire
HHRAP : Human Health Risk Assessment Protocol
ICPE : Installation Classée pour la Protection de l'Environnement
INCA : Individuelle et Nationale de Consommation Alimentaire
INERIS : Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques
INRA : Institut National de Recherche en Agronomie
INSEE : Institut National de la Statistique et des Études Économiques
IRIS : Integrated Risk Information System
IS : Indice de Sensibilité
LAI : Indice de surface foliaire
OMS : Organisation Mondiale de la Santé
RFD : Reference Dose
SFSP : Société Française de Santé Publique
TRIM : Total Risk Integrated Methodology
TSCF : Facteur de concentration du flux de transpiration
US-EPA : United States Environment Protection Agency
USGS : United States Geologic Survey
VTR : Valeur Toxicologique de Référence

Liste des tableaux

Tableau 1 : compartiments environnementaux de CalTOX.....	6
Tableau 2 : classes des coefficients de variation de CalTOX	10
Tableau 3 : VTR pour l'arsenic	11
Tableau 4 : vecteurs d'exposition par ingestion dans CalTOX.....	12
Tableau 5 : 'toggles' pour la prise en compte de l'ingestion dans CalTOX.....	13
Tableau 6 : paramètres sensibles pour l'ingestion	19
Tableau 7 : indices de sensibilité et classement des paramètres sensibles.....	20
Tableau 8 : minima et maxima testés pour le paramètre ' <i>Kpa</i> '.....	20
Tableau 9 : influence des paramètres sensibles sur la dose d'exposition totale	21
Tableau 10 : valeurs de ' <i>Dair</i> ' et de ' <i>Dwater</i> '.....	22
Tableau 11 : paramètres relatifs aux couches du sol	26
Tableau 12 : fraction volumique de l'air du sol en fonction du traitement subi	27
Tableau 13 : maxima sous CalTOX pour les fractions volumiques d'air.....	28
Tableau 14 : maxima sous CalTOX pour les fractions d'eau	28
Tableau 15 : valeurs par défaut de ' <i>foc_s</i> ' pour différents scénarii.....	29
Tableau 16 : valeurs de LAI selon l'espèce végétale	31
Tableau 17 : production végétale journalière selon l'espèce végétale.....	31
Tableau 18 : masses volumiques des différentes parties de la plante.....	32
Tableau 19 : valeurs de fraction d'interception humide	33
Tableau 20 : quantités d'eau ingérée	35
Tableau 21 : choix de la provenance de l'eau sous CalTOX.....	35
Tableau 22 : proportions de produits locaux consommés selon les régions	36
Tableau 23 : valeurs des paramètres ' <i>lvdc</i> ', ' <i>lvbc</i> ' et ' <i>lvh</i> '.....	37
Tableau 24 : modification de l'ordre de contribution des vecteurs à la dose d'exposition par remplacement des valeurs de paramètres	37
Tableau 25 : modes de transferts des polluants à partir du sol.....	38
Tableau 26 : modes de transferts des polluants du sol aux végétaux	38
Tableau 27 : épaisseur de sol superficiel minimale requise selon la durée de demi-vie dans le sol superficiel choisie.....	39

Summary

**Relevance and feasibility of using CalTOX 4.0 for the estimation of exposures through metals ingestion:
*for example, arsenic given off by ferrous-metals foundries.***

French administration represented by DRIRE (Regional Direction of Industry, Research and Environment) may require more relevant studies concerning public health impacts. Working group of French Environment Ministry showed that risks for health due to indirect exposure to metals, ingested through metal-foundries-contaminated drinking water, fruits and vegetable and so on, may be truly important.

This paper deals with exposure to ingestion of metals. The American multimedia fate and exposure model CalTOX 4.0 is used to calculate the potential exposure dose linked to the ingestion of heavy metals such as arsenic. This pollutant is used as an example in this study.

Is the model adapted to the French context of ingestion of food, water and soil contaminated by emissions of metals in the air by industries?

Input parameters are needed to run the software. These parameters are chemical-specific parameters, landscape characteristics and exposure factors. Definition and values for the input parameters have been search for.

Two deterministic sensitivity methods – the CalTOX 4.0 sensitivity analysis unit and a method based on minimum and maximum values of parameters – have been performed to rank the input parameters on the contribution to variance in the output.

It seems that on the one hand, CalTOX 4.0 is a suitable exposure model. On the other, all categories of parameters were important for the example of arsenic.

The users of the software should pay attention to the lack of French input values and the fact that other parameters seem to be specific to the chemical pollutant. Studies should be performed in order to estimate more precisely the exposure that is to say to understand more accurately which parameters are important or not.

INTRODUCTION

Les activités exercées par les fonderies de métaux ferreux génèrent des rejets à l'atmosphère susceptibles de contenir diverses substances et métaux, dont l'arsenic, métal cancérigène

Pour la population générale, la voie principale d'exposition à l'arsenic est l'ingestion d'eaux ou d'organismes ayant concentré l'arsenic [1].

L'arsenic est un oligo-élément essentiel à la vie, l'homme en a besoin à hauteur de 10 à 20 µg/j [1]. L'étude de l'alimentation totale française, Mycotoxines, minéraux et éléments traces de mai 2004 estime qu'un adulte français ingère 62 µg d'arsenic par jour [2].

L'arsenic présente des concentrations ubiquitaires dans tous les compartiments de l'environnement, dans un ordre décroissant d'importance, dans le sol, puis dans les sédiments marins, l'eau douce de surface, l'eau douce de mer et l'air [3]. Le principal apport naturel d'arsenic dans l'environnement est le volcanisme. Sinon, les activités humaines telles les fonderies et la combustion du charbon constituent la majorité des apports d'arsenic à l'environnement.

Ainsi, une voie d'exposition indirecte comme l'ingestion d'aliments produits sous le vent des émissions atmosphériques de métaux par une industrie peut alors être une part importante de l'exposition globale. Aujourd'hui, il semble que cette voie d'exposition soit peu étudiée dans les études d'impact des dossiers de demandes d'autorisation d'exploitation des ICPE, faute de méthode ou d'outil adéquat véritablement reconnu et disponible en France.

Le présent mémoire a pour objectif d'étudier la pertinence et la faisabilité de l'utilisation du logiciel américain CalTOX 4.0 pour l'évaluation de l'exposition par ingestion de métaux. L'arsenic émis par une fonderie de l'Est de la France est pris comme cas d'étude.

Dans un premier temps, le contexte et l'objet du travail réalisé seront détaillés. Puis, le logiciel et les méthodes utilisés seront explicités. Enfin, les résultats des simulations correspondant à différents scénarii de l'exposition seront présentés et l'origine des différences de résultats discutées.

CONTEXTE ET OBJET DU MÉMOIRE

1.1 Cadre réglementaire des ICPE

Les activités qui présentent des dangers ou des inconvénients pour la commodité du voisinage, la santé, la sécurité et la salubrité publique, l'agriculture, la nature ou l'environnement, sont réglementées. La loi n°76-663 du 19 juillet 1976 relative aux ICPE (Installations Classées pour la Protection de l'Environnement) encadre ces activités afin de réduire ou d'éviter toute pollution en provenance de ces installations. Seules les installations dont une ou plusieurs de ses activités font l'objet d'une inscription sur une liste appelée nomenclature, sont soumises à cette loi.

Son décret d'application, daté du 21 septembre 1977 prévoit en fonction de la dangerosité des activités mentionnées dans la nomenclature, deux types de procédures :

- une procédure d'autorisation pour les activités présentant de graves dangers ou inconvénients
- une procédure de déclaration pour les activités ne présentant pas de tels dangers

Dans les deux cas, l'exploitant de l'installation doit déposer un dossier de demande d'autorisation ou de déclaration.

Les dossiers de déclaration, adressés au préfet, avant la mise en service de l'installation, doivent fournir des renseignements sur la nature et le volume des activités ainsi que des plans de situation.

Le dossier de demande d'autorisation doit fournir des informations plus techniques et précises. Ainsi, le pétitionnaire pourra être amené à faire appel à des services extérieurs afin d'établir un dossier complet. En effet, pour obtenir une autorisation d'exploiter, les ICPE doivent élaborer entre autres une étude d'impact et la présenter à la DRIRE (Direction Régionale de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement) qui est en charge de l'inspection de ces installations. Cette étude comprend une description de l'état initial du site, une analyse des conséquences du projet sur le milieu naturel et sur le voisinage, ainsi que les raisons pour lesquelles le projet a été retenu et les mesures envisagées pour réduire les dommages du projet sur l'environnement.

Plus précisément, les études d'impact pour les ICPE doivent montrer que les activités exercées ne porteront pas atteintes à la santé publique. Elles s'appuient sur des évaluations des risques pour la santé prenant en compte l'ensemble des voies d'exposition. Cette évaluation des risques sanitaires, aussi communément appelée volet sanitaire, est rendue obligatoire par l'article 19 de la loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie, loi n°96-1236 du 30 décembre 1996.

1.1.1 Evaluation des risques dans le Volet Sanitaire de l'Etude d'Impact

Elle doit permettre de déterminer les conséquences du fonctionnement normal des installations sur la santé des populations riveraines. Les expositions considérées sont donc de longues durées.

L'évaluation des risques repose sur la démarche développée dans les années 80 par l'Académie des Sciences des Etats-Unis. Elle doit respecter les principes suivants :

- le principe de précaution : en absence de connaissances suffisantes, il convient de prendre sans délai les mesures appropriées pour prévenir un risque pour l'homme et l'environnement

- le principe de proportionnalité : les études menées et les solutions proposées doivent être cohérentes avec l'importance de la pollution et de son incidence attendue
- le principe de transparence : les hypothèses retenues, les outils utilisés et le degré d'approfondissement doivent être argumentés, afin que les choix faits puissent être discutés
- le principe de spécificité : l'étude doit être spécifique aux caractéristiques du site et à son usage futur

L'évaluation comporte classiquement plusieurs étapes successives :

- l'identification des dangers : identification des effets indésirables qu'une substance peut provoquer chez l'homme
- l'évaluation de la relation dose-réponse : estimation de la relation entre le niveau d'exposition à une substance et l'incidence et la gravité de cet effet
- l'évaluation de l'exposition : détermination des voies de passage du polluant de la source vers la cible, ainsi que de la fréquence, la durée et l'importance de l'exposition
- la caractérisation des risques : expression quantitative du risque à partir de la synthèse des informations issues de l'évaluation de l'exposition et de l'évaluation de la toxicité de la substance. Les incertitudes sont évaluées et les résultats interprétés

Dans ce mémoire, on s'intéresse à l'étape d'évaluation de l'exposition par ingestion.

1.1.2 Étape d'évaluation de l'exposition

Elle conduit à déterminer ou à estimer pour chaque type de populations exposées :

- la durée et la fréquence de l'exposition. Elles sont estimées à partir des habitudes des populations concernées. Seules les expositions chroniques (exposition récurrente ou continue correspondant à la fraction de la vie significative) et subchroniques (exposition seulement sur une partie de l'année) sont prises en compte
- les voies d'exposition. Elles sont déterminées en fonction des données recueillies lors du diagnostic concernant le potentiel de transfert des polluants et en fonction des pratiques des populations exposées. Ce sont donc l'ensemble des points d'exposition (points de contact entre la cible et le milieu contaminé) et les modes d'exposition (l'ingestion). L'ensemble de ces informations conduit à l'élaboration de scénarii d'exposition pour chaque cible.
- le niveau de l'exposition. Il est déterminé à partir des informations précédentes et l'estimation de la concentration des polluants dans les milieux d'exposition. Il est exprimé sous la forme d'une dose d'exposition (DE) en mg/kg/j. La DE est la quantité de polluant ingérée par la cible.

1.2 Modélisation de l'exposition par un logiciel multimédia

La quantification de la concentration de la pollution dans le milieu d'exposition est souvent réalisée à l'aide d'une modélisation, les mesures analytiques n'étant pas toujours réalisables.

La modélisation est un outil qui permet d'obtenir une image approchée de la réalité. L'image sera d'autant meilleure que les paramètres du modèle seront pertinents par rapport au problème posé et que les données nécessaires à sa mise en œuvre auront été

déterminées le plus soigneusement possible. Ainsi, un modèle est une interprétation abstraite, simplifiée et idéalisée d'une description de la réalité.

Le modèle est mathématique lorsqu'il comporte un ensemble d'équations ou de formalisations mathématiques représentant les propriétés du modèle et hypothèses retenues [4].

Il y a un besoin de modélisation, motivé par :

- le fait qu'en améliorant le niveau de connaissance des approches de modélisation, meilleure seront les études d'évaluation des expositions
- la multiplicité des voies d'exposition d'un organisme à une substance
- le besoin et la pertinence de considérer les expositions sur le long terme (plusieurs dizaines d'années, voire la vie entière)
- la difficulté de réalisation de mesures directes sur les personnes
- la nécessité de réaliser des études prospectives

1.3 Rejets atmosphériques de métaux et exposition de la population

Une ICPE comme par exemple une fonderie de métaux ferreux émet des rejets atmosphériques de métaux lourds dangereux pour la santé de la population. Ils doivent donc être étudiés dans l'évaluation des risques sanitaires de l'étude d'impact.

On pense tout de suite à une exposition de la population par inhalation de polluants émis par les cheminées des ICPE. Cette exposition « directe » est prise en compte grâce à l'utilisation de modèles mathématiques réputés et reconnus par les administrations françaises. Qu'en est-il de l'exposition « indirecte » par ingestion et par contact cutané à ces substances polluantes ? Il semble qu'à l'heure actuelle, l'accent ne soit pas vraiment mis sur ces voies d'exposition. Or, comme le rapporte un groupe de travail du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable, au sujet de la problématique des Grandes Installations de Combustion, les expositions indirectes dues aux retombées au sol des émissions atmosphériques ne sont pas systématiquement négligeables [5].

1.4 Objectif du mémoire

L'objet de ce mémoire est d'étudier la pertinence et la faisabilité d'utiliser la version 4.0 de CalTOX pour l'évaluation de l'exposition par ingestion de métaux, dû aux retombées au sol des rejets atmosphériques. Le cas de l'arsenic émis par les cheminées d'une fonderie de métaux ferreux sera considéré. Ainsi, on tentera de répondre aux questions suivantes :

- Y a-t-il adéquation du logiciel avec l'évaluation de l'exposition par ingestion d'arsenic, polluant émis à partir des cheminées de fonderies de métaux ferreux ?
- Quelle est la faisabilité de renseigner convenablement le modèle ?
- Quelle est la sensibilité du modèle aux paramètres ?

Finalement, le travail permettra de mettre en évidence les éléments auxquels sont associés les plus fortes incertitudes et les paramètres qu'il serait souhaitable de « creuser » dans le cadre d'une approche itérative de l'évaluation de l'exposition.

MATERIEL ET MÉTHODE

2.1 Présentation du modèle utilisé : CalTOX 4.0

CalTOX est un modèle développé sous Excel par le Lawrence Berkeley National Laboratory pour le Department of Toxic Substances Control (DTSC) de la California Environmental Protection Agency, agence responsable de la gestion des déchets dangereux de la Californie [6].

La première version de CalTOX a été développée en 1994. Le but initial était d'aider à l'évaluation des risques pour la santé et à la définition des seuils de remédiation pour les sols pollués par des déchets dangereux et de déterminer des niveaux d'assainissement des sols qui permettraient de réhabiliter ces zones. Néanmoins, l'évaluation des risques liés à d'autres sources de pollution est possible.

Des modifications ont été faites pour permettre une plus large utilisation du logiciel. La version 4.0 (version bêta) de CalTOX a été rendue publique en août 2002.

Le modèle utilisé dans le cadre de ce mémoire est la version 4.0. Le modèle et la documentation sont disponibles sur Internet à l'adresse : <http://eetd.lbl.gov/ied/era> [7].

Il comporte deux parties :

- un modèle de transfert des polluants dans l'environnement permettant de calculer les concentrations dans les compartiments environnementaux. Le logiciel permet de prendre en compte une source polluante sous la forme d'une concentration de polluant dans l'atmosphère.
- un modèle d'exposition qui permet de calculer les concentrations dans les compartiments d'exposition et les doses d'exposition

2.1.1 Compartiments environnementaux

L'environnement est représenté par huit compartiments, représenté chacun par un indice dans la feuille de calcul de CalTOX.

Tableau 1: compartiments environnementaux de CalTOX

Compartiment	Indice
Air	a
Feuilles des plantes	l
Surface des feuilles des plantes	c
Couche de sol superficiel	g
Couche de sol racinaire	s
Couche de sol non saturée	v
Eau de surface	w
Sédiments	d

Par rapport à la version 2.3, le compartiment « végétaux » est scindé en deux entités : la feuille et la surface des feuilles ou cuticule.

A ceux-ci se rajoute l'indice q pour désigner les données relatives à l'aquifère.

Chaque compartiment est défini par sa masse totale, son volume total, la masse de sa phase liquide, de sa phase solide et sa masse gazeuse. Pour chaque compartiment, un bilan est effectué sur les apports et les pertes de la substance chimique le concernant. Les quantités ou concentrations de polluants dans les compartiments sont décrits par des équations différentielles du premier ordre, linéaires et couplées.

Par ailleurs, CalTOX différencie trois niveaux de sol [8].

- le sol superficiel correspondant aux premiers cm '*ground-surface soil*'
Dans CalTOX, les roches, la glace, les cendres et le sol cimenté ne sont pas considérés comme faisant partie du sol. L'épaisseur ne peut excéder les 2 cm.
- le sol racinaire '*root-zone soil*'
- le sol vadose '*vadose-zone soil*' qui correspond à la couche de sol située immédiatement en dessous du sol racinaire et qui est située au-dessus de la nappe phréatique. C'est une zone d'aération (non saturée en air et en eau).

2.1.2 Modélisation des transferts environnementaux du polluant

La modélisation des transferts du polluant entre les différents compartiments est basée sur le modèle des fugacités.

La fugacité est une grandeur thermodynamique homogène à une pression et qui traduit le comportement d'une substance chimique pour de faibles concentrations. La fugacité représente alors la potentialité de fugacité d'échappement d'une substance à partir d'un compartiment. Par ailleurs, une substance évolue toujours du compartiment où sa fugacité est la plus élevée vers celui où elle est la plus faible. Deux phases à l'équilibre ont la même fugacité.

La concentration d'un polluant dans un compartiment est égale à :

$$C = f \times Z$$

avec f : fugacité (Pa)

Z : capacité fugace du milieu

Remarque : Z est une grandeur dépendante de la température, de la pression, de la substance et du compartiment

CalTOX effectue l'inventaire d'une substance parmi les compartiments et estime la tendance de cette substance sur une certaine période à rester dans un compartiment, à être transportée dans un autre compartiment ou à se transformer en une autre substance. Le transport de la substance chimique dans les compartiments s'effectue par diffusion (mouvement d'un fluide d'un milieu à forte concentration vers un milieu à faible concentration, mouvement lié aux propriétés cinétiques des particules de matières) et par advection (flux de matière, apport ou perte, mouvement du polluant dû au milieu dans lequel il se trouve lui-même en mouvement) à l'interface de plusieurs compartiments [9].

2.1.3 Calcul des doses d'exposition (DE)

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

A partir de ces concentrations dans les milieux d'exposition, les doses d'exposition sont calculées.

L'intégration de données toxicologiques permet de calculer les niveaux de risque.

2.1.4 Atouts et limites de CalTOX

Plusieurs atouts motivent le choix de ce logiciel pour étudier l'exposition humaine à l'ingestion de métal. Les principaux avantages sont donnés ci-après.

- Conservation de la masse dans l'environnement
- Prise en compte des rejets à l'atmosphère, dans les eaux et dans le sol
- Gratuité du logiciel et facilité de téléchargement par Internet

- Transparence puisque l'utilisateur peut accéder aux équations de la feuille de calcul
- Flexibilité puisque l'on peut modifier les valeurs de chaque paramètre. On peut choisir de considérer ou non certaines variables et voies d'exposition. Aussi, on peut ajouter de nouvelles substances, paysages et caractéristiques d'exposition humaines.
- Prise en compte de la notion de végétaux protégés (ayant une enveloppe non comestible). Les végétaux non exposés sont les végétaux protégés par une enveloppe que la cible ne consommera pas. Ils peuvent être contaminés lors des prélèvements par les racines dans le sol et par l'eau (souterraine ou superficielle) prélevée. Les végétaux exposés subissent une pollution par l'air (par les composés sous forme gazeuse et la poussière), le sol (superficiel et racinaire) et l'eau (souterraine ou de surface).

Par contre, certaines situations ne peuvent ou ne doivent pas être modélisées par l'intermédiaire du logiciel [10, 11,12, 13]. Des conditions d'utilisation sont répertoriées ci-après.

- **La source de pollution**

CalTOX est utilisable pour une zone essentiellement terrestre. Soit le sol est initialement contaminé (*'contaminated soil'*) et on utilise une concentration de polluant initial présent dans ce sol, soit il y a un flux de pollution constant au cours du temps et dans un compartiment environnemental que l'utilisateur définit entre l'air, le sol et/ou l'eau (*'continuous emission'*).

Le flux de pollution dans l'air est exprimé en mol/j (variable notée 'Sa').

- **Échelle géographique et temporelle**

Si l'émission n'est pas constante durant la période d'exposition, la valeur d'entrée de CalTOX reflète la valeur moyenne de ces valeurs d'émission.

Si l'émission varie au cours du temps, plusieurs calculs sont effectués, pour chaque période d'exposition. Ensuite, les résultats sont cumulés pour obtenir une dose d'exposition globale [8].

- **Le délai entre le début de l'émission des polluants et l'exposition**

CalTOX modélise les phénomènes après une période entre la pollution et l'exposition au moins égale à un an. C'est un modèle qui a été mis au point pour des expositions longues, de plusieurs mois à plusieurs décennies. C'est pourquoi il n'est pas recommandé pour une utilisation si la période est inférieure à un an.

- **La nature de la molécule étudiée**

CalTOX est adapté pour la modélisation du devenir de substances organiques. Toutefois, l'INERIS énonce que la prise en compte des métaux suppose d'adapter les paramètres. En effet, le modèle s'appuie sur les notions de fugacité et de capacité de fugacité (la fugacité est définie à partir des propriétés chimiques des substances comme la pression de vapeur, la solubilité, le coefficient de partage octanol-eau).

- **La surface d'étude**

CalTOX n'est pas, d'après ses concepteurs, approprié pour une étude sur une surface inférieure à 1000 m². Cette limite de superficie a été indiquée pour une pollution présente dans les sols. Il n'est pas non plus conseillé d'utiliser le modèle si la proportion de la surface de terrain recouverte d'eau de surface superficielle par rapport à la surface totale est supérieure à 10%.

2.1.5 Données d'entrée requises

A) Trois types de paramètres d'entrée

Trois types de données d'entrée sont requis pour le fonctionnement du logiciel : les paramètres physico-chimiques de la substance polluante, les paramètres environnementaux du site étudié et les paramètres humains d'exposition. Une liste complète figure en annexe 1.

L'ensemble des paramètres d'entrée est décrit par défaut par une valeur moyenne et un coefficient de variation (CV).

- **Les paramètres physico-chimiques**

La modélisation du transfert des polluants entre les différents compartiments environnementaux fait appel à des paramètres caractérisant la substance polluante. Certains paramètres sont à renseigner avec précision dans la mesure où ils définissent la phase (liquide, solide ou gazeuse) dans laquelle se trouve le polluant puis conditionnent la prévision du devenir du polluant [14]. On distingue deux types de paramètres :

- Les paramètres physico-chimiques à proprement parlé

Les valeurs des paramètres physico-chimiques sont déterminées expérimentalement. Logiquement, suivant les conditions en laboratoire, les moyens et les méthodes analytiques, on obtient diverses valeurs.

- Les paramètres où interviennent des processus biologiques

Leur détermination est aussi expérimentale et les valeurs présentent alors une incertitude.

CalTOX fournit un jeu de données par défaut pour chaque substance chimique de sa base de données. 36 paramètres sont à renseigner.

- **Les paramètres environnementaux**

Les paramètres à renseigner numériquement sont pour la plupart relatifs au sol. Ensuite, les autres paramètres environnementaux décrivent les conditions météorologiques, hydrogéologiques...

Il est à noter que pour certains paramètres, les valeurs par défaut sont identiques quel que soit le paysage considéré. Il en est ainsi, par exemple, pour les paramètres relatifs aux végétaux qui ne dépendent pas de l'État ou de la région aux États-Unis.

Un paramètre d'entrée décrit la surface du site, trois paramètres sont des données météorologiques, quatre des données atmosphériques, douze des données hydrologiques, 21 paramètres sont des données pédologiques et 17 sont des données relatives à la flore.

- **Les paramètres humains d'exposition**

CalTOX propose différentes valeurs de paramètres d'exposition humaine selon l'âge et le sexe de la cible. On comprend aisément que ces valeurs sont représentatives d'une population américaine. Pour autant, certaines d'entre elles peuvent très bien être adaptées pour une situation française (taux de respiration au repos par exemple).

B) Coefficient de variation des paramètres dans CalTOX

CalTOX attribue des coefficients de variation pour chacun des paramètres proposés par défaut. Ces CV sont calculés à partir des valeurs trouvées dans la littérature par les développeurs du logiciel. Ainsi, pour n valeurs trouvées, x_1, x_2, \dots, x_n , un écart type S_n et un coefficient de variation est calculé selon :

$$S_n = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n}} \quad \text{et} \quad CV = \frac{S_n}{\bar{x}}$$

Où $\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^n x_i}{n}$ est la moyenne arithmétique de toutes les valeurs disponibles.

Cinq classes, correspondant à cinq niveaux d'incertitude quant à la valeur attribuée à un paramètre, sont listées dans le tableau 2.

Tableau 2 : classes des coefficients de variation de CalTOX

Catégorie de CV	Degré d'incertitude
CV Inférieur à 0,1	Paramètre hautement fiable
0,1 < CV < 0,3	Paramètre dont la valeur a été obtenue à l'aide d'une méthode d'estimation hautement fiable
0,3 < CV < 3	Paramètre dont la valeur retenue découle d'une méthode plutôt fiable
3 < CV < 5	Paramètre dont la valeur a été estimée de manière peu fiable
10 < CV < 15	Paramètre dont la valeur estimée est empreinte d'une forte incertitude

On peut alors raisonnablement estimer que plus un paramètre par défaut a un CV faible, plus on peut avoir confiance en sa valeur. Ce paramètre ne contribue que très peu à la variabilité ou à l'incertitude globale entourant le résultat. Pourtant, il ne faut pas oublier que la détermination d'un CV est le résultat d'un processus lui-même incertain.

Par ailleurs, les CV compris entre 0,1 et 0,3 reflètent bien la variabilité due aux mesures et l'incertitude due à l'extrapolation expérimentale [11]. Le CV n'est utile que pour effectuer une analyse probabiliste du niveau de risque.

2.2 Faisabilité d'utilisation de CalTOX pour modéliser l'exposition par ingestion d'un métal

2.2.1 Choix de l'arsenic comme polluant pour le mémoire

Les composés émis par une fonderie de métaux ferreux sont nombreux et susceptibles de porter atteinte à la population riveraine. Les effets de certains composés sont tout à fait négligeables par rapport à d'autres, en raison de leur faible toxicité et/ou des faibles quantités rejetées.

Le choix de la substance étudiée en évaluation des risques sanitaires s'effectue en fonction de plusieurs critères :

- la dangerosité : critère le plus important puisqu'il conditionne la pertinence du choix en terme de santé publique.
- la quantité à l'émission : la présence d'une substance dans un milieu d'exposition est en relation directe avec les quantités émises à la source.
- l'accessibilité et la solidité des connaissances concernant la substance : critère de faisabilité et de fiabilité quant à la démarche globale.
- l'existence de VTR (Valeur Toxicologique de Référence)
- le devenir de la substance dans l'environnement
- les préoccupations de la population vis-à-vis des substances
- les usages des ressources locales dans la zone d'influence du site

L'arsenic est un métalloïde ubiquitaire qui existe sous quatre degrés d'oxydation (-3, 0, +3, +5). Il est naturellement présent à l'état de traces dans la croûte terrestre et se retrouve dans les milieux naturels (sols, air, eaux). A l'état pur, l'arsenic est un métal gris, mais il est rarement présent sous cette forme. Il est généralement combiné à d'autres éléments tels l'oxygène, le chlore ou le soufre. Il est alors inorganique. Associé à de l'hydrogène, l'arsenic est organique [3].

L'arsenic peut aussi provenir des activités humaines. Les exploitations minières, la fusion des métaux et l'utilisation des combustibles fossiles contribuent à la pollution arsenicale. L'arsenic a longtemps été utilisé comme insecticide et herbicide, contaminant ainsi de nombreux sols de vieux vergers mais aussi comme protection du bois d'œuvre.

Dans l'inconscient collectif, l'arsenic est assimilé à un poison. Au final, parce que l'arsenic est présent naturellement dans les milieux, tout le monde y est plus ou moins exposé. Sa dangerosité est réelle. Des expositions chroniques à l'arsenic peuvent être à l'origine de cancers des poumons, de la peau, de la vessie et du rein. L'arsenic inorganique est plus toxique que l'arsenic organique car il est plus métabolisé et plus réactif avec les composés cellulaires.

Des VTR relatives à l'ingestion d'arsenic existent et permettent ainsi la caractérisation du risque. Ces VTR, présentées dans le tableau 3, sont celles retenues par CalTOX [14].

Tableau 3 : VTR pour l'arsenic

Effet systémique (ingestion)	Effet cancérigène (ingestion)
RfD (Reference Dose) = 3.10^{-4} mg/kg/j (IRIS ¹ , ATSDR ²)	ERU (Excès de risque unitaire) = 1.5 (mg/kg/j) ⁻¹ (IRIS)

L'arsenic, une fois dans l'atmosphère, est en majeure partie absorbé sur des particules en suspension. Dans le cadre professionnel, l'exposition principale se fait par la voie inhalatoire. En dehors, l'exposition est surtout due à l'ingestion des produits contaminés par la chaîne alimentaire [15].

L'absorption digestive d'arsenic inorganique est très importante, de 80 à 90% de la dose ingérée selon la forme de l'arsenic. Mais les formes organiques d'origine alimentaire ne sont pas fixées par les tissus et sont éliminées sans aucune transformation [1].

¹ IRIS : Integrated Risk Information System

² ATSDR : Agency for Toxic Substances and Disease Registry

2.2.2 Caractéristiques de la source de pollution

Dans le cadre du mémoire, la concentration de polluant dans l'air est considérée comme constante durant la période de rejet. La contamination du sol superficiel est liée pour l'essentiel à celle de l'air. Donc sa concentration est quasi constante au cours du temps.

On pose également comme hypothèse que la pollution est homogène sur toute la surface d'étude.

L'ensemble des polluants est assimilé à un polluant unique. C'est une hypothèse simplificatrice d'admettre que les composés arsenicaux sont assimilés à l'arsenic. De toute façon, CalTOX, bien que proposant de choisir entre «arsenic » et «composés arsenicaux » dans sa liste de substances chimiques, ne fait aucune distinction entre les deux en attribuant les mêmes valeurs pour les paramètres par défaut.

Il n'est pas tenu compte de la spéciation de l'arsenic. Lors de la modélisation, c'est donc l'arsenic pur qui est considéré.

2.2.3 Choix de l'ingestion comme voie d'exposition

On distingue plusieurs voies d'exposition des riverains aux rejets industriels. Dans ce mémoire, seule la voie « ingestion » est prise en compte.

Aussi, les différents vecteurs d'exposition proposés par CalTOX sont exposés dans le tableau 4.

Tableau 4 : vecteurs d'exposition par ingestion dans CalTOX

Voie d'exposition	Milieu		
	air	sol	eau
Ingestion	- Ingestion de fruits, légumes et graines contaminés par un transfert de substances chimiques de l'atmosphère aux plantes	- Ingestion de sol - Ingestion de fruits, légumes et graines contaminés par un transfert à partir du sol	- Ingestion d' eau potable - Ingestion de fruits, légumes et graines irrigués
	- Ingestion de viande, de lait et d'œufs contaminés par un transfert de l'air aux plantes, puis des plantes aux animaux	- Ingestion de viande, de lait et d'œufs contaminés par un transfert du sol aux plantes, puis des plantes aux animaux	- Ingestion de viande, de lait et d'œufs provenant d'animaux ayant consommé de l'eau contaminée
	- ingestion de viande, de lait et d'œufs provenant d'animaux ayant inhalé de l'air contaminé	- Ingestion de viande, de lait et d'œufs provenant d'animaux ayant ingéré du sol contaminé	- Ingestion de poisson et de produits de la mer - Ingestion d' eau superficielle lors d'une baignade ou autre activité nautique
	- Ingestion de lait maternel	- Ingestion de lait maternel	- Ingestion de lait maternel

Les ingestions de sol et d'eau contaminée sont des contacts directs de la cible avec la pollution. Tandis que l'ingestion des divers aliments est une ingestion indirecte de polluant, les aliments étant contaminés tout au long de la chaîne alimentaire par l'air, l'eau et le sol.

Les aliments sont soit d'origine végétale, cultivés sur le site ou à proximité, soit d'origine animale, préparés à partir d'animaux élevés, chassés ou pêchés sur ou à proximité du site.

Dans CalTOX, pour prendre en compte cette voie d'exposition, il faut sélectionner les 'toggles' (que l'on peut traduire par hypothèses) adéquats en les mettant à la valeur 1. Les autres hypothèses sont mises à 0. L'ensemble des 'toggles' retenus pour l'ingestion est précisé dans le tableau 5.

Tableau 5 : 'toggles' pour la prise en compte de l'ingestion dans CalTOX

All inhalation exposures indoors active	0	Contaminant transfer, air to plants surfaces	1
All inhalation exposures indoors resting	0	Contaminant transfer, ground soil to plant surfaces	1
Inhalation exposure in shower/bath	0	Contaminant transfer, root soil to plant tissues	1
Inhalation exposures outdoors active	0	On-site grazing of animals	1
Inhalation of air particles indoors	0		
Transfer of soil dust to indoor air	0	Ingestion of home-grown exposed produce	1
Transfer of soil vapors to indoor air	0	Ingestion of home-grown unexposed produce	1
On-site inhalation by animals	1	Ingestion of home-grown meat	1
		Ingestion of home-grown milk	1
Use of ground water as tap water	1	Ingestion of home-grown eggs	1
Use of surface water as tap water	1	Ingestion of locally caught fish	1
Ingestion of tap water	1	Direct soil ingestion	1
Use of ground water for irrigation	1	Soil contact exposure at home or at work	0
Use of surface water for irrigation	1	Dermal exposure during shower/bath	0
		Dermal & ingestion exposures while swimming	1
Use of ground water for feeding animals	1		
Use of surface water for feeding animals	1	Breast-milk ingestion by infants	1

La mise du 'toggle' '*Dermal and ingestion exposures while swimming*' à 1 est nécessaire pour prendre en compte l'ingestion accidentelle d'eau superficielle durant la baignade récréative ou toute autre activité nautique. Cependant, cette manœuvre entraîne le calcul d'une dose d'exposition par contact cutané. Il convient alors de vérifier systématiquement que la dose d'exposition par contact cutané est négligeable devant la dose d'exposition par ingestion pour le calcul de risque.

Par ailleurs, il faut poser des hypothèses concernant l'origine de l'eau du robinet et de l'eau utilisée pour l'irrigation des terres agricoles.

On note quatre 'toggles' relatifs aux animaux :

- '*On site inhalation by animals*' (inhalation de l'air par les animaux sur le site)
- '*Use of ground water for feeding animals*' (utilisation d'eau souterraine pour les animaux)
- '*Use of surface water for feeding animals*' (utilisation d'eau superficielle pour les animaux)
- '*On-site grazing of animals*' (animaux qui paissent sur le site)

Ils interviennent dans les calculs intermédiaires de concentrations dans les milieux d'expositions viande, lait de vache et œufs. Il est donc indispensable de les conserver pour l'évaluation de l'exposition par ingestion.

2.3 Origine des valeurs des paramètres d'entrée

2.3.1 Sources bibliographiques

Les définitions et valeurs numériques des paramètres utilisées dans le cadre du mémoire proviennent des sources suivantes :

- ouvrages et publications scientifiques relatifs à la substance étudiée
- méthodes recommandées et publiées par des organismes scientifiques
- études environnementales issues du bureau d'études
- connaissances et expériences des experts
- consultations des administrations françaises
- documentations techniques des logiciels de modélisations des risques sanitaires

Plus précisément, les principales sources de renseignement pour ce mémoire sont listées ci-après.

- **Consultation d'organismes**

La recherche de données spécifiques au site étudié a principalement été menée auprès des DRIRE, DIREN (Direction Générale de l'Environnement) et Chambre d'agriculture du département voire de la région. Le BRGM (Bureau de Recherches Géologiques et Minières), l'observatoire de la qualité de l'air intérieur et les agences de l'eau ont pu être contactés par téléphone et par mail via leurs sites Internet respectifs.

- **Documentation du logiciel TRIM [16]**

La documentation du logiciel TRIM (Total Risk Integrated Methodology) est intéressante. TRIM est un logiciel développé par l'US-EPA (United States Environment Protection Agency) et qui présente des analogies avec CalTOX.

- **Valeurs de constat d'impact**

Les paramètres du sol sont en partie renseignés grâce aux valeurs de constat d'impact (VCI) proposées par l'INERIS. Une VCI est une valeur guide française, utilisée dans le cadre de la méthode nationale d'évaluation simplifiée des risques, permettant de constater l'impact de la pollution d'un milieu, en fonction de son usage. L'INERIS propose des valeurs physico-chimiques pour un sol de type limoneux aux caractéristiques intermédiaires entre un sol argileux et un sol sableux [14].

- **Enquête INCA 99**

L'enquête INCA (Individuelle et Nationale de Consommation Alimentaire) a été réalisée entre 1998 et 1999 par le CREDOC (Centre de Recherche pour l'Étude et l'Observation des Conditions de Vie). Elle consiste en un relevé des consommations alimentaires d'un échantillon national de 3003 individus (adultes et enfants) sur sept jours consécutifs [17].

- **Météo France**

Les valeurs de pluviométrie, température, journées d'enneigement, vitesse du vent sont fournies par Météo France. Leurs modes d'obtention permettent à l'évaluateur d'avoir confiance en la justesse des valeurs proposées.

- **The distribution of California Landscape Variables for CalTOX**

The distribution of California Landscape Variables for CalTOX est un document publié par le DTSC. Pour renseigner par défaut les paramètres du site, les concepteurs de CalTOX utilisent des données représentatives de l'état de Californie. Ce sont des valeurs moyennes issues pour la plupart de la base de données informatisée Geographic Information Systems. Le choix de la valeur par défaut et du CV est fonction de l'existence et de plausibilité de la valeur générée par l'une et l'autre méthode.

Dans le mémoire, on cherchera à définir des intervalles de valeurs dans lesquels ces paramètres peuvent fluctuer. Ensuite, plusieurs calculs de la variable de sortie seront réalisés.

2.3.2 Obtention de différentes valeurs pour un paramètre

On ne peut pas diminuer la variabilité d'un système naturel, puisqu'elle est intrinsèque au milieu naturel. Cependant, elle peut être comprise et bien quantifiée en donnant au paramètre une valeur minimale et une valeur maximale ou en lui attribuant une distribution de valeurs et ensuite analyser les conséquences de ces variations sur le résultat.

Une méthode « classique » consiste à faire varier la valeur d'un paramètre de plus et moins 10%.

Une méthode utilisée par A. Pillebout dans son mémoire de fin d'études (IGS, promotion 2002-2003) consiste à calculer une valeur maximale et minimale avec les équations suivantes qui intègrent le coefficient de variation :

$$\text{minimum} = \text{valeur moyenne} \times (1 - 3 \times \text{CV})$$

$$\text{maximum} = \text{valeur moyenne} \times (1 + 3 \times \text{CV})$$

Le choix de la multiplication du CV par 3 s'explique par le fait que pour une loi normale, l'ensemble des valeurs comprises entre la moyenne moins trois fois l'écart type et la moyenne plus trois fois l'écart type correspond à une probabilité de 99,73% de se trouver dans la plage réelle de valeurs. Des facteurs inférieurs (2 ou 1) diminuent cette probabilité.

2.3.3 Choix des valeurs

On veillera surtout à :

- Écarter les valeurs les plus divergentes. Il ne s'agit pas d'obtenir des minima et maxima farfelus. Encore faut-il que ces valeurs restent plausibles. Aussi, si par le calcul des minima, des valeurs négatives sont générées, alors elles seront remplacées par zéro
- Choisir les valeurs en fonction du nombre de données, de leur représentativité, des conditions expérimentales et des sources documentaires
- Préférer les valeurs mesurées expérimentalement à des valeurs estimées ou calculées
- Choisir des valeurs dont les conditions expérimentales sont adaptées au cas étudié (exemple : même type de sol)
- Lorsque plusieurs valeurs sont disponibles, faire une moyenne (arithmétique ou géométrique)

2.4 Analyse de sensibilité

2.4.1 Variabilité et incertitude des paramètres

Un paramètre est soumis à une variabilité et à une incertitude.

La variabilité est due à la diversité des cas et des situations impliquant des valeurs différentes. Elle peut être spatiale, temporelle et inter-individuelle.

L'incertitude est due aux défauts de connaissance concernant le paramètre. Elle est liée à une mesure, un échantillonnage mais aussi à la variabilité des paramètres. En effet, c'est le cas lorsque l'on a recours à la moyenne arithmétique par exemple (cela dépend en plus de la variabilité du paramètre et de la taille de l'échantillon considérés).

Dans certains cas, les variations entre les paramètres ne sont pas nécessairement indépendantes (exemple : quantité d'aliments consommées par un individu – poids de l'individu).

2.4.2 Méthodes disponibles pour effectuer une étude de sensibilité

L'objectif d'une analyse de sensibilité est de définir les paramètres qui ont le plus de poids (paramètres les plus sensibles) sur le résultat (risque calculé) et de savoir quels seront ceux à connaître avec précision dans le modèle multimédia.

Une analyse de sensibilité peut porter sur la structure du modèle, la forme des équations ou les valeurs des paramètres.

Dans le cadre du mémoire, on s'intéresse à la sensibilité du logiciel aux paramètres, en déterminant lesquels ont le plus de poids dans l'exposition.

A) Deux approches d'analyse de sensibilité

- **Approche déterministe**

Elle a recours à différents scénarii (qui doivent rester plausibles) par la modification une par une de la valeur des paramètres (en laissant les autres paramètres à leur valeur nominale) pour mesurer l'impact de chaque paramètre sur la variable de sortie.

Les résultats obtenus par cette méthode reflètent alors le lien mathématique reliant les paramètres d'entrée à la sortie du modèle et le poids numérique de chaque paramètre sur le résultat final [9].

Cette approche par scénarii évalue l'incertitude due à la variabilité naturelle. Mais cela ne peut conduire à une évaluation quantitative de l'incertitude.

- **Approche probabiliste**

L'incertitude sur les données est la seule qui puisse s'évaluer quantitativement en utilisant une approche probabiliste. Cette méthode prend en compte toutes les valeurs possibles prises par un paramètre. En effectuant une analyse probabiliste, une distribution statistique du résultat est calculée à partir des distributions statistiques ou des fonctions de densité de probabilité des paramètres d'entrée. Par exemple, la technique de simulation de Monte Carlo consiste à effectuer de nombreuses itérations de calcul du résultat en tirant à chaque fois au sort une valeur dans chacune des distributions d'entrée [1].

B) Module d'analyse de sensibilité de CalTOX

CalTOX possède un module d'analyse de sensibilité paramétrique. L'analyse peut porter sur le risque ou sur le quotient de danger induit par le polluant.

Par ailleurs, CalTOX peut être couplé à un logiciel comme Crystal Ball ou @Risk pour mener une analyse de sensibilité probabiliste.

Le module de sensibilité de CalTOX permet la détermination du sens de variation du modèle par rapport aux différents paramètres. En effet, un signe négatif ou positif indique le sens de la pente au point considéré.

La sensibilité est évaluée à l'aide d'une analyse différentielle. Pour chaque paramètre, le module d'analyse de sensibilité de CalTOX calcule un score de sensibilité suivant la relation :

$$\text{Score de Sensibilité} = \text{Sensibilité Locale} \times \text{Coefficient de Variation}$$

C) Méthode du calcul de l'indice de sensibilité (IS)

Un indice de sensibilité peut être calculé pour chaque paramètre. L'IS inclut la variabilité des paramètres d'entrée. Il correspond à :

$$IS = \frac{D_{\max} - D_{\min}}{D_{\max}}$$

Avec D_{\max} : valeur maximale prise par la variable de sortie

D_{\min} : valeur minimale prise par la variable de sortie

Les valeurs maximales et minimales sont obtenues en faisant varier chaque paramètre sur toute sa gamme de variation.

Plus IS est proche de 1, plus le paramètre est sensible puisque D_{\max} et D_{\min} seront alors plus éloignés l'un de l'autre.

Une autre façon de calculer IS correspond à prendre comme dénominateur commun D_{moy} (valeur moyenne de la variable de sortie). En utilisant D_{moy} , c'est la différence entre D_{\min} et D_{\max} qui est comparé. Un IS supérieur à 1 peut être obtenu.

Ainsi, un classement des paramètres en fonction de leur sensibilité peut être effectué.

2.4.3 Critères de sélection des paramètres sensibles

Le module d'analyse de sensibilité de CalTOX donnera une première liste de paramètres. Mais tous les paramètres mis ainsi en évidence seront-ils réellement influents sur le résultat ? Des critères de sélection des paramètres effectivement influents sur le résultat seront appliqués pour l'obtention d'une deuxième liste. Ces critères sont :

- un paramètre ayant une sensibilité locale est a priori influent sur le résultat
- un paramètre sensible commun à plusieurs simulations est un argument en faveur de son importance
- un paramètre qui sur tout ou partie de sa gamme de variation engendre une modification du résultat est considéré comme étant influent

Les deux premiers critères servent à établir la première liste de paramètres. A partir de celle-ci, le logiciel tournera avec de nouvelles valeurs, la modification des valeurs consistant à attribuer un maximum puis un minimum plausibles (choisis entre les valeurs de la littérature, du site, de CalTOX ou calculés suivant l'une des méthodes d'obtentions de minima et maxima). Les valeurs d'entrée seront modifiées une à une, les autres

paramètres restant à leur valeur nominale. La variation engendrée sur l'ERI étant alors observée.

2.5 Hypothèses retenues pour les simulations réalisées

- variable de sortie : '*risk*' soit l'ERI (Excès de Risque Individuel)
- surface d'étude soumise à une pollution continue : '*continuous emission*'
- rejet atmosphérique d'arsenic (polluant spécifique à l'activité) exprimée par un flux de pollution dans l'air '*Sa*' (mol/j).
- Masse molaire de l'arsenic : 74,92 g/mol
- élimination des phénomènes de dégradation par application de durées de demi-vie très longues ; les polluants sont supposés s'accumuler pendant toute la durée de fonctionnement de l'installation
- délai pris en compte entre la pollution et l'exposition: 365 jours
- prise en compte de la voie d'exposition par ingestion
- cible humaine définie dans le cadre d'un scénario résidentiel : adulte de 70 kg, riverain de la fonderie, exposé durant 30 ans (durée d'émission du polluant) et par convention, la fréquence d'exposition pendant cette durée est de 365 jours par an.

Le jeu de données d'entrée (paramètres physico-chimiques, du site et d'exposition) utilisées figure en annexe 2.

RÉSULTATS

3.1 Résultats de l'analyse de sensibilité

Une analyse de sensibilité du modèle aux paramètres a été réalisée et ceci pour tous les paramètres, même ceux choisis en fonction de l'étude et qui ne présentent donc pas de variation. Ainsi, si ces paramètres sont influents, cela indiquera que l'évaluateur devra les renseigner avec précision et précaution. La variable de sortie choisie était 'risk'.

Les analyses de sensibilité ont été réalisées pour différents « scénarii ». On en trouvera la liste en annexe 3.

3.1.1 Paramètres sensibles

A) 1^{ère} liste : paramètres présentant une sensibilité locale

L'analyse réalisée par le module de sensibilité intégré à CalTOX fait apparaître comme facteurs de variation du résultat les paramètres présentés en annexe 4.

B) 2^{ème} liste : paramètres influents retenus

Après application des critères de sélection des paramètres influents, le tableau 6 présente les paramètres retenus.

Tableau 6 : paramètres sensibles pour l'ingestion

Paramètres physico-chimiques	Paramètres du site	Paramètres d'exposition
<i>Kd_s</i>	<i>area</i>	<i>Ig</i>
<i>Kd_v</i>	<i>rain</i>	<i>Imk</i>
<i>Kd_q</i>	<i>inflow</i>	<i>Imt</i>
<i>Kd_d</i>	<i>rhob_a</i>	<i>legg</i>
<i>Kpa</i>	<i>v_d</i>	<i>IsI</i>
<i>Bk</i>	<i>D_bio</i>	<i>fabv_grd_v</i>
<i>Bt</i>	<i>f_arw</i>	<i>flocal_v</i>
<i>BCF</i>	<i>v_w</i>	<i>flocal_g</i>
		<i>flocal_mk</i>
		<i>flocal_mt</i>
		<i>flocal_egg</i>
		<i>flocal_fsh</i>

Toutes les catégories de paramètres sont représentées. Les paramètres relatifs au site sont plus nombreux.

Certains paramètres, bien que n'ayant pas entraînés de variation de résultat ('*Imt*', '*Imk*', '*legg*', '*flocal_mk*', '*flocal_mt*', '*flocal_egg*', '*flocal_fsh*' et '*IsI*') sont quand même retenus. En effet, les calculs ont été fait en modifiant les valeurs à plus ou moins 10% de la valeur initiale. Il se peut que des scénarii (mise à 80% de la part d'aliments locaux consommés par exemple) fassent apparaître des valeurs entraînant des variations de résultat.

Sont aussi influents les paramètres masse molaire, poids de la cible, durée de fonctionnement de l'installation et durée d'exposition. Mais dans le cadre du mémoire, les valeurs de ces paramètres ne sont pas modifiées car ces paramètres font partie des hypothèses de base de toutes les simulations.

3.1.2 Hiérarchisation des paramètres sensibles

Pour les paramètres jugés sensibles précédemment, les indices de sensibilité ont été calculés (les valeurs utilisées sont en annexe 5) et un classement a été établi. D_{max} et D_{moy} ont été utilisés tour à tour comme dénominateur commun.

Seuls sont localement sensibles ' Kd_s ' et ' Kd_d '. Mais le choix étant de faire varier tous les ' Kd ' en même temps et de leur affecter les mêmes valeurs, il n'apparaît dans les tableaux de résultats que le terme ' Kd '.

Tableau 7 : indices de sensibilité et classement des paramètres sensibles

Paramètre	IS (avec D_{max})	Classement	IS (avec D_{moy})	Classement
Kpa (CalTOX)	0,988	1	1,95	1
Kd	0,975	2	0,952	4
<i>area</i>	0,882	3	1,58	2
<i>inflow</i>	0,546	4	0,751	7
Bt	0,306	5	0,361	8
<i>f_arw</i>	0,271	6	0,315	13
<i>D_bio</i>	0,263	7	0,302	10
Kpa (10%)	0,185	8	0,101	11
<i>rhob_a</i>	0,132	9	0,142	16
<i>v_w</i>	0,127	10	0,136	12
<i>flocal_g</i>	0,098	11	0,085	12
<i>fabv_grd_v</i>	0,097	12	0,102	14
<i>flocal_v</i>	0,097	13	0,102	17
<i>lg</i>	0,096	14	0,1	6
Bk	0,063	15	0,066	3
<i>v_d</i>	0,05	16	0,513	15
<i>rain</i>	0,034	17	1	5
BCF	0,033	18	0,096	9

Suivant l'utilisation de D_{max} ou de D_{moy} , le classement s'en trouve modifié. ' v_d ' et ' $rain$ ' sont mieux classés avec l'utilisation de D_{moy} . On retrouve toujours ' Kd ', ' $area$ ' et ' $inflow$ ' dans les cinq paramètres les mieux classés.

' Kpa ' intervient dans le calcul de la contamination des végétaux par l'atmosphère. Le minimum et le maximum de ' Kpa ' ont été calculés selon deux méthodes : celle où on estime plus ou moins 10% de la valeur initiale et celle où le CV de CalTOX intervient. Les valeurs calculées, exprimées en m^3 (air) / m^3 (plante) sont reportées dans le tableau 8.

Tableau 8 : minima et maxima testés pour le paramètre ' Kpa '

Valeur par défaut	« méthode des + et - 10% »		« méthode utilisant le CV de CalTOX »	
	minimum	maximum	minimum	maximum
13700	12330	15070	valeur négative	547567

La méthode faisant intervenir le CV donne des résultats très différents de la « méthode des + et - 10% ». De plus, le minimum calculé est une valeur négative et le maximum est presque 40 fois plus grand que la valeur initiale.

Le fait de calculer un indice de sensibilité pour ' Kpa ' et de mettre en évidence ce facteur dans le classement des paramètres sensibles est justifié dans les paragraphes où sont discutés les limites des méthodes employées pour l'obtention de valeurs paramétriques et celles des analyses de sensibilité.

3.1.3 Résultats de l'analyse « paramètre par paramètre »

Une à une, les valeurs des paramètres ont été modifiées (mise à la valeur entraînant un ERI plus grand). Les modifications sur la dose d'exposition calculée sont récapitulées dans le tableau 9. Les paramètres météorologiques n'ont pas été testés.

Tableau 9 : influence des paramètres sensibles sur la dose d'exposition totale

Paramètre	Influence sur les doses d'exposition liées aux concentrations en polluants dans les milieux
Coefficient de partition (Kd)	Une baisse de la dose d'exposition liée aux eaux Une hausse dans les autres milieux
Facteur de biotransformation plante-air (Kpa)	Une hausse liée à l'air et au sol racinaire
Facteur de biotransformation alimentation bovine/lait (Bk)	Une hausse liée à l'air, les couches du sol et l'eau souterraine
Facteur de biotransformation alimentation bovine/viande (Bt)	Une hausse liée à l'air, les couches du sol et l'eau souterraine
Facteur de biotransformation poisson/eau (BCF)	Une hausse liée à l'eau de surface
Surface (area)	Une hausse liée à tous les milieux
Apport d'eau (inflow)	Une hausse liée à l'eau de surface
Bioturbation (D_bio)	Une hausse liée à l'air, le sol racinaire et l'eau de surface Une baisse liée au sol superficiel et l'eau souterraine
Charge en poussières de l'atmosphère (rhob_a)	Une hausse liée à l'air, les couches du sol et l'eau souterraine Une baisse liée à l'eau de surface
Vitesse de déposition des particules dans l'air (v_d)	Une hausse liée à l'air, la couche de sol racinaire et l'eau de surface Une baisse liée au sol superficiel et l'eau souterraine
Fraction du site recouverte par l'eau de surface (f_arw)	Une hausse liée à l'air, le sol et l'eau souterraine Une baisse liée à l'eau de surface
Quantité d'aliments et de sol ingérées	Une hausse liée à l'air et le sol
Fraction de fruits et légumes exposés (fabv_grd_v)	Une hausse liée à l'air et le sol
Fraction d'aliments locaux	Une hausse liée à l'air, le sol et l'eau de surface

Il a été vérifié que le modèle était monotone c'est-à-dire que la valeur du risque calculé avec la valeur « moyenne » du paramètre d'entrée est bien comprise entre la valeur du risque correspondant à la valeur minimale et la valeur du risque correspondant à la valeur maximale.

3.2 Description des paramètres sensibles pour l'ingestion

Les paragraphes suivants présentent les paramètres sensibles et ceux dont la définition par l'utilisateur a posé quelques questionnements notamment sur la validité de la valeur proposée par CalTOX par rapport à l'état actuel des connaissances et de l'usage envisagé. Les paramètres dont on sait qu'ils sont entachés d'une forte variabilité ou incertitude sont également considérés.

Les paramètres n'intervenant pas dans l'exposition par ingestion ne sont pas exposés.

3.2.1 Paramètres physico-chimiques décrivant le polluant étudié

- **Pression de vapeur 'Vp'**

'Vp' évalue le taux d'évaporation d'une substance. Sa valeur dépend de la température. Dans le cas de l'arsenic, elle est nulle par défaut mais la température considérée n'est pas précisée.

- **Coefficient de diffusion dans l'air pur et l'eau pure 'Dair' et 'Dwater'**

Ces coefficients sont utilisés pour décrire, à la température ambiante, le mouvement de la substance dans la phase gazeuse (ou liquide) en réponse à une différence de concentration dans la phase gazeuse (ou liquide) [18].

Les résultats de la recherche de valeurs sont contenus dans le tableau 10.

Tableau 10 : valeurs de 'Dair' et de 'Dwater'

'Dair' (m ² /j)		'Dwater' (m ² /j)	
Valeur	Source	Valeur	Source
6,40.10 ⁻¹ avec CV=0,08	CaITOX	6,60.10 ⁻⁵ avec CV=0,24	CaITOX
5,32.10 ⁻¹	US-EPA (2000b)	2,80.10 ⁻⁴	US-EPA (2000b)
Non disponible	INERIS	Non disponible	INERIS

- **Coefficient de partage (ou de distribution) sol- eau 'Kd'**

'Kd' est défini comme le rapport, à l'équilibre, de la concentration de la phase solide à celle de la phase liquide de l'élément en solution dans le système sol/solution du sol [19]. C'est un paramètre qui permet de caractériser le résultat des mécanismes de rétention d'un élément dans un sol.

L'utilisation du 'Kd' est fortement controversée en raison des incertitudes et biais expérimentaux liés à sa détermination. Pour l'arsenic (+5), une étude de Baes et Sharp (1983) propose une étendue de valeurs de 'Kd' de 1,9 à 18 L/kg. Une étude de Buchter *et al.* (1989) propose une étendue de valeurs de 'Kd' de 8,5 à 1500 L/kg. Pour l'arsenic élémentaire, (degré d'oxydoréduction 0) Sauvé *et al.* (2000) propose une valeur de 'Kd' à 13100 L/kg. L'US-EPA (1996) propose un Kd de 200 L/kg [3].

En fait, la valeur de 'Kd' est fonction du pH. Le Soil Screening Guidance propose une étendue de valeurs de 'Kd' pour des pH allant de 4,9 à 8,0. 'Kd' varie alors de 25 à 31 L/kg pour l'arsenic (+3) [20]. Les pH acides (<5) et élevés des sols calcaires (>8) favorisent l'absorption d'arsenic par les végétaux [3].

En bref, il n'existe pas de valeur spécifique de 'Kd' pour l'arsenic [19]. L'évaluation du 'Kd' pour un sol doit prendre en compte l'adsorption de l'arsenic et sa cinétique d'oxydation. On peut prévoir que la mobilité de l'arsenic dans un sol sableux et pauvre en matière organique sera plus grande que dans un sol limoneux ou argileux.

- **Facteur de bioconcentration (biotransformation) poisson/eau 'BCF'**

La bioaccumulation d'une substance chimique correspond à l'augmentation de sa concentration dans un organisme vivant par rapport à sa concentration dans le milieu environnemental, en intégrant les apports via l'eau, les sédiments, l'air, le sol et la nourriture. Elle est estimée par le BCF (Bioconcentration Factor) [18].

Le BCF est le rapport de la concentration du composé étudié dans l'organisme (chair du poisson) sur la concentration du composé dans le milieu (eau). Le BCF est déterminé expérimentalement. On trouve de nombreuses valeurs dans la littérature concernant la bio-accumulation d'arsenic dans les organismes aquatiques.

Le BCF est spécifique de l'espèce et des conditions du milieu. Il s'agit alors de prendre l'espèce la plus proche de celle consommée par le récepteur et de prendre la valeur correspondant à la chair plutôt qu'à l'ensemble du poisson, lorsque cela est possible.

La contamination des poissons est liée à la contamination de l'eau superficielle dans laquelle ils vivent.

La dose d'exposition à l'arsenic par ingestion de poissons se calcule de la manière suivante :

$Dose\ d'exposition\ par\ ingestion\ de\ poissons = BCF \times concentration\ de\ polluant\ dans\ l'eau\ de\ surface \times ingestion\ de\ poissons\ par\ la\ cible$

On voit donc que plus le BCF est grand, plus la dose d'exposition est importante.

BCF peut prendre plusieurs valeurs selon l'espèce considérée. Par exemple, Barrows et al. (1980) trouve un BCF de 4 pour *Lepomis macrochirus* (crapet arlequin), Guthrie et al. (1979) trouve un BCF de 114 pour *Crassostrea virginica* (huître) et Reish et le May (1991) un BCF de 1000 pour *Capitella capitata* (polychète) [3]. Le guide de l'HHRAP (Human Health Risk Assessment Protocol) [21] propose une valeur de 20 qui est une moyenne géométrique de plusieurs valeurs littéraires.

Par ailleurs, selon la directive 67/548/CEE, une substance n'est pas considérée comme bioaccumulable si le BCF est inférieur à 100 [18]. D'après les valeurs trouvées, on ne pourrait se prononcer sur la bioaccumulabilité de l'arsenic.

- **Transpiration Stream Concentration Factor 'TSCF'**

Le TSCF où facteur de concentration du flux de transpiration, en français, caractérise l'efficacité du mouvement dans les pousses à partir des racines, soit le flux de transpiration [9], la transpiration permettant de transférer le polluant du sol à la tige puis de la tige à la feuille.

Ce facteur s'exprime comme étant le rapport entre la concentration de sève dans le xylème (m^3) sur la concentration dans la solution (m^3).

Sa valeur est liée à celle du 'Kow'. Pour $Kow = 0$, $TSCF = 1$.

Sinon, CalTOX calcule une valeur selon l'équation :

$$TSCF = 0,7 \exp\left(-\left(\frac{(\log Kow - 3,07)^2}{2,78}\right)\right)$$

Trapp (2003) [22] donne deux autres équations :

$TSCF = 0,784 \exp\left(-\left(\frac{(\log Kow - 1,78)^2}{2,44}\right)\right)$, relation établie par Briggs et al. (1982) pour les semis d'orge.

$TSCF = 0,756 \exp\left(-\left(\frac{(\log Kow - 2,50)^2}{2,58}\right)\right)$, relation établie par Burken et al. (1998) pour les peupliers.

Il est à noter que la relation utilisée par CalTOX est la même quelle que soit la substance chimique pris en compte et qu'il n'est pas fait référence dans la documentation accompagnant le logiciel de l'espèce végétale pour laquelle elle est établie.

- **Facteur de biotransformation plante-air 'Kpa'**

'Kpa' permet d'estimer la contamination des plantes par absorption des polluants gazeux. Il correspond au rapport entre la concentration de polluants dans la plante et la concentration dans l'air. Il s'exprime en m^3 d'air par kg frais de végétal. Ce facteur peut donc varier en fonction de l'espèce végétale. C'est un paramètre dont les valeurs sont mal connues [23].

- **Facteur de biotransformation alimentation bovine-viande 'Bf' et alimentation bovine-lait 'Bk'**

Pour évaluer la concentration de polluant accumulée dans la viande ou le lait, il faut tenir compte de facteurs de biotransformation reliant les quantités ingérées par l'animal aux

concentrations susceptibles de s'accumuler dans les tissus ou sécrétions consommées par la cible humaine.

'Bt' est défini par défaut sous CalTOX avec une valeur de $6,20 \cdot 10^{-5}$ j/L de viande et avec un CV de 12. L'INERIS propose $Bk = 2 \cdot 10^{-2}$ j/kg [5]. Le guide de l'HHRAP propose $Bk = 2 \cdot 10^{-3}$ j/kg [21]. On remarquera que CalTOX exprime ce facteur en jour par litre de viande. C'est une unité peu usuelle et peut-être une erreur syntaxique dans le logiciel.

'Bk' relie le niveau d'exposition de la vache au lait produit.

CalTOX utilise par défaut la valeur de $6,20 \cdot 10^{-5}$ j/kg de lait avec un CV de 10. L'INERIS propose $Bk = 1 \cdot 10^{-4}$ j/kg [3]. Le guide de l'HHRAP propose $Bk = 6 \cdot 10^{-3}$ j/kg [21].

3.2.2 Paramètres du site

A) Données météorologiques

La moyenne annuelle des précipitations, la température ambiante moyenne et la vitesse annuelle moyenne du vent étant renseignées grâce aux données de Météo France, il est tout aussi pertinent de conserver leurs valeurs quel que soit le type de scénario envisagé, mais pour une même zone géographique.

- **Température 'temp'**

Ce paramètre doit décrire la température moyenne sur une période de plusieurs années. Météo France donne la température annuelle moyenne sur les périodes allant de 1955 à 2001. Ainsi, la variabilité du paramètre est « effacée ».

- **Pluviométrie 'rain'**

CalTOX annonce une pluviométrie calculée à partir des moyennes mensuelles observées au cours des trente dernières années. Le modèle étant conçu pour considérer des périodes d'exposition longues, la valeur de la pluviométrie est alors fiable. Sur les fiches de stations, Météo France calcule la pluviométrie sur de longues périodes, allant de 1954 à 2001 pour celle utilisée dans l'étude de cas, soit 47 ans. À noter cependant que pour CalTOX, la valeur de pluviométrie proposée par défaut est une moyenne annuelle calculée à partir des moyennes mensuelles observées au cours de trente années [24].

- **Vitesse du vent 'v_w'**

La vitesse du vent proposée par Météo France est la moyenne de huit valeurs quotidiennes relevées sur une période de 39 ans.

B) Données atmosphériques

Sur les quatre qui sont nécessaires au fonctionnement de CalTOX (charge en poussières de l'air 'rhob_a', vitesse de dépôt des particules de l'air 'v_d', fraction d'aérosols organiques 'foc_ap' et épaisseur de l'air au-dessus du sol 'del_ag'), seuls 'foc_ap' et 'del_ag' ne sont pas des paramètres sensibles.

- **Charge en poussières de l'atmosphère 'rhob_a'**

Si on considère que les poussières sont des particules fines et légères produites par les activités industrielles et urbaines, alors, on sait déjà que cette quantité ne doit pas dépasser l'objectif de qualité fixé par le décret du 6 mai 1998 modifié par le décret du 15 février 2002, soit $30 \cdot 10^{-9} \text{ kg/m}^3$ (valeur annuelle moyenne des concentrations de particules en suspension de diamètre aérodynamique inférieur ou égal à 10 micromètres (PM10)). Par ailleurs, dans le cadre de la surveillance de la qualité de l'air, on sait que la charge atmosphérique en poussières est comprise entre 20 et $40 \mu\text{g/m}^3$.

La valeur propre au logiciel est de $6,15 \cdot 10^{-8} \text{ kg/m}^3$ avec $\text{CV} = 0,20$. J. Charbonnel, dans son mémoire, utilise $3,8 \cdot 10^{-8} \text{ kg/m}^3$ pour l'agglomération d'Angers et de Toulouse. Une valeur de $1,81 \cdot 10^{-8} \text{ kg/m}^3$ a été mesurée dans l'environnement immédiat de l'usine du cas d'étude.

- **Vitesse de déposition des particules dans l'air 'v_d'**

Elle dépend de plusieurs variables incluant les paramètres concernant la surface, la particule et les conditions météorologiques. La littérature présente des valeurs très différentes pour ce paramètre. On trouve des vitesses les plus élevées de 1728 m/j à 4320 m/j. La plus faible est de 334 m/j [8].

Pour CalTOX, il faut considérer les fines particules en suspension au-dessus du sol.

La valeur de 500 m/j proposée par défaut est une moyenne arithmétique. D'après J. Charbonnel, cette valeur est facilement reprise par les évaluateurs français [24].

- **Fraction organique des aérosols 'foc_ap'**

Les aérosols sont des fines particules liquides ou solides en suspension dans l'air. En général, la matière organique particulaire représente 10 à 30% de la masse particulaire totale [25]. CalTOX propose par défaut $\text{foc_ap} = 0,20$ avec $\text{CV} = 1$.

C) Données hydrologiques

Pour rappel, il y en a 12 à renseigner dont le paramètre 'f_arw' qui s'avère être sensible puisqu'une modification de sa valeur entraîne aussi celle du résultat.

- **Apport d'eau sur le site 'inflow'**

La quantité d'eau apportée sur le site est calculée en tenant compte des eaux de ruissellement des surfaces imperméabilisées du site.

- **Vitesse du courant pour les eaux de surface 'current_w'**

Ce paramètre est d'après les concepteurs du modèle, utilisé pour définir la résistance au transfert massique à la surface d'un corps.

Le modèle n'est pas sensible à ce paramètre à moins que l'on ne soit en présence d'une rivière à débit très fort. Dans le cas d'un lac, 'current_w' est nul.

- **Sédiments en suspension dans les eaux superficielles 'rhob_w'**

Sous CalTOX, une valeur de $0,8 \text{ kg/m}^3$ avec $\text{CV} = 1$ est donnée par défaut. [23] Elle correspond à la moyenne relevée à partir de 14 stations de mesures californiennes.

- **Recharge des eaux souterraines 'recharge'**

La recharge des eaux souterraines peut être un paramètre peu important si la contamination a lieu par le compartiment aérien [24].

CalTOX peut calculer ce paramètre comme suit :

$$recharge = 1 - f_{arw} \times 0,49 \times rain$$

Puis, la valeur retenue pour le calcul du risque est le minimum entre la valeur calculée et celle définie par l'évaluateur.

La SFSP (Société Française de Santé Publique) (1999) propose une valeur de 5.10^{-4} m/j [24].

La DIREN de la région du site d'étude estime que sur 800 mm de précipitations/an, environ 80 mm participent à la recharge des eaux souterraines, soit recharge = $2,19.10^{-5}$ m/j.

- **Ruissellement 'runoff'**

Dans CalTOX, 48% des précipitations ruissellent, soit runoff = $53,7.10^{-4}$ m/j.

La DIREN de la région du site d'étude estime que sur 800 mm de précipitations/an, environ 120 mm participent ruissellent sans s'infiltrer, soit runoff = $15,1.10^{-5}$ m/j (15% des précipitations)

Une donnée du site permet de caractériser plus précisément ce paramètre. Sur 810 mm de précipitation, 275 mm ruissellent, soit runoff = $22,7.10^{-5}$ m/j (34% des précipitations).

- **Évaporation de l'eau de surface 'evaporate'**

Ce paramètre est déterminé par des mesures. Il faut savoir que la lame d'eau évaporée est fonction du type de ressource (cours d'eau, plan d'eau) et de l'importance de la tranche d'eau.

- **Fraction du site recouvert par l'eau de surface 'f_arw'**

Ce paramètre pourrait s'évaluer grâce à des cartes topographiques du BRGM [9].

D) Données pédologiques

Les paramètres d'entrée relatifs aux différentes couches sont listés dans le tableau 11.

Tableau 11 : paramètres relatifs aux couches du sol

	Sol superficiel	Sol racinaire	Sol non saturé
Épaisseur du sol (m)	<i>d_g</i>	<i>d_s</i>	<i>d_v</i>
Densité de particules (kg/m ³)	<i>rhos_s</i>		
Teneur en eau (fraction volumique)	<i>beta_g</i>	<i>beta_s</i>	<i>beta_v</i>
Teneur en air (fraction volumique)	<i>alpha_g</i>	<i>alpha-s</i>	<i>alpha_v</i>
Erosion (kg/m ² .j)	<i>erosion_g</i>		
Teneur en carbone organique (fraction)		<i>foc_s</i>	<i>foc_v</i>

- **Épaisseur de la couche de sol racinaire 'd_s'**

L'épaisseur de la couche de sol racinaire est un paramètre dont la valeur est normalement spécifique au site étudié. En général, on sait que le sol racinaire mesure entre 20 et 30 cm si on l'associe au sol labourable (cultivable) [18]. Le Soil Conservation Service (organisme aux Etats-Unis) attribue un maximum d'1,5 m d'épaisseur à cette couche de sol.

Dans CalTOX, 'd_s' est dépendante de la durée de demi-vie du polluant dans le sol racinaire 'half_s'.

'd_s' est utilisé pour le calcul du volume compartimental relatif à la zone racinaire 'Vs'.

$$V_s = area \times (1 - f_{arw}) \times d_s$$

Ainsi, 'd_s' intervient dans les calculs de fugacités et dans les processus de diffusion de la pollution).

Un avertissement (terme 'warning' sous CalTOX) concerne 'd_s' : 'root-zone soil too shallow for accuracy of diffusion model' soit « la couche de sol racinaire n'est pas assez profonde pour que les transferts par diffusion du polluant soient exacts.

Il prend la valeur 1 lorsque la valeur proposée par l'évaluateur de risque est inférieure à la valeur minimale requise pour les calculs de modélisation du devenir du polluant.

'd_s' doit au minimum être égal à 1,4 x del_s où del_s représente la longueur de diffusion dans le sol supérieur en mètre et se calcule ainsi :

$$del_s = 318,4 \times \left(10^{(0,683 \times \log(D_s))} \right)$$

Avec D_s : coefficient de diffusion dans la couche de sol racinaire (m^2/j). D_s est calculé à partir des fugacités et de 'D_bio', la bioturbation (en m^2/j) qui est liée à l'activité d'organismes benthiques. La bioturbation joue un rôle sur la structure sédimentaire (les organismes se déplacent ou creusent des cavités dans les sédiments) et les processus biogéochimiques se produisant dans les sédiments.

'D_bio' est un paramètre d'influence d'après l'analyse de sensibilité. Si on remplace la valeur propre au logiciel (0,00012 m^2/j avec un CV de 1) par 0 (soit pas de phénomène de bioturbation) alors la dose d'exposition est multipliée par 1,37, en lien principalement avec une augmentation de la concentration en arsenic dans les produits exposés.

- **Fraction volumique de l'air contenu dans le sol superficiel, le sol racinaire et la couche de sol non saturée 'alpha_g', 'alpha_s' et 'alpha_v'**

La quantité d'air dans un sol dépend de sa nature mais des traitements subis. Ainsi, un sol tassé contient moins d'air qu'un sol labouré.

Dans le mémoire de J. Charbonnel [24] sont recensés plusieurs teneurs en air.

Tableau 12 : fraction volumique de l'air du sol en fonction du traitement subi

Etat du sol	Fraîchement travaillé	Plusieurs mois après travail	Sol non travaillé
Fraction volumique de l'air	0,22	0,17	0,14

Par ailleurs, l'arsenic de forme (V) prédomine dans les sols très bien aérés [26].

CalTOX accepte les valeurs maximales suivantes pour ces paramètres :

Tableau 13 : maxima sous CalTOX pour les fractions volumiques d'air

Paramètre	Maximum
alpha_g	0,4
alpha_s	0,4
alpha_v	0,35

Or, pour un sol de type limoneux, l'INERIS propose $\alpha_g = 0,50$ et $\alpha_s = 0,50$ [5].

- **Fraction d'eau '*beta_g*', '*beta_s*', '*beta_v*', '*beta_q*'**

C'est l'eau utile, c'est-à-dire celle disponible pour les végétaux, qui est considérée. Il n'a pas été trouvé d'autres valeurs de '*beta_v*' et de '*beta_q*'. Le mode d'obtention de celles de CalTOX n'est pas explicité.

Pour ces paramètres aussi, CalTOX accepte des valeurs maximales :

Tableau 14 : maxima sous CalTOX pour les fractions d'eau

Paramètre	Maximum
beta_s	0,4
beta_v	0,55
beta_q	0,60

Les teneurs en eau du sol diffèrent selon la géologie de celui-ci. Ainsi, on peut trouver que les sols sableux contiennent 5% d'eau, les argiles en contiennent 12% et les limons argileux généralement 20%. Une autre source d'informations [27] indique que les sables contiennent entre 35% et 50% d'eau et les argiles, entre 30% et 65%.

- **Épaisseur de sol non saturée '*d_v*'**

La valeur propre au modèle provient de l'United States Geologic Survey annual summary of water resources data (1983) [8]. Pour l'ensemble des états californiens, l'épaisseur moyenne de sol non saturée est de 34 m, l'intervalle allant de 0 à 147 m. La valeur par défaut proposée est de 0,557 m avec un CV de 0,37.

La détermination de l'épaisseur de sol vadose est intimement liée à celle du sol racinaire. Il semble aussi que l'estimation de la profondeur de la nappe dépende des échelles temporelle et spatiale. En effet, les variations de niveaux sur le long terme (en terme de plusieurs années) ne sont pas prises en compte.

L'épaisseur de sol non saturé de quelques mètres dans les plaines alluviales peut atteindre jusqu'à plus de 100 m dans les zones karstiques [28].

- **Érosion de la couche de sol superficiel '*erosion_g*'**

Bien qu'il soit difficile de déterminer l'érosion au niveau de la zone d'étude, il existe une carte publiée par l'INRA (Institut National de Recherche en Agronomie) qui montre la sensibilité des sols à l'érosion [29]. La région du site d'étude n'est pas une région sujette à une forte érosion du sol.

D'un point de vue général, les roches massives (granite, calcaire) sont faiblement soumises à l'érosion.

- **Teneurs en carbone organique 'foc'**

Les 'foc' permettent d'estimer l'adsorption du polluant sur les particules de sol. Sa teneur varie en fonction de la profondeur. Un sol qui contient une valeur de l'ordre de 3 à 5% de matière organique est considéré comme un sol riche en matière organique. La teneur en matière organique du sol est très basse lorsqu'elle est de l'ordre de 1 à 2% [30].

Stevenson (1994) propose une formule pour calculer le carbone organique à partir de la matière organique [30] :

$$\text{Teneur en } \mathbf{carbone} \text{ organique} = \text{teneur en } \mathbf{matière} \text{ organique} / 1,727$$

Dans CalTOX, il faut renseigner quatre teneurs en carbone organique, celle du sol superficiel (foc_s), du sol vadose (foc_v), de la zone aquifère (foc_q) et des sédiments (foc_d).

$$foc_s = \min((rootlipid + valeur) \times ajustement; 0,2)$$

Où *valeur* est la valeur moyenne du paramètre
ajustement est un coefficient d'ajustement égal à 1 par défaut et qui n'est à modifier que pour réaliser des analyses de sensibilité et d'incertitude

$$rootlipid = (1 - beta_root) \times \frac{bm_root}{rho_root} \times \left(\frac{Area \times (1 - f_arw)}{Vs} \right)$$

rootlipid est la quantité de lipide dans le sol racinaire (m³/m³ de sol)

bm_root est la masse humide de racines (kg/m² de sol) et est calculée à partir des paramètres *veg_prod*, *beat_root* et *rho_root*

Vs est le compartiment sol racinaire (m³)

CalTOX propose les valeurs par défaut suivantes :

Tableau 15 : valeurs par défaut de 'foc_s' pour différents scénarii

Scénario (type de sol)	Valeur de 'foc_s'
California Residential Site (CA Res)	1,56.10 ⁻²
Sol limoneux	8,89.10 ⁻³
Sol argileux	2,78.10 ⁻²

Avec les équations écrites dans la feuille de calcul Excel de CalTOX, on voit que le maximum accepté par CalTOX est de 0,2 soit une teneur maximale en carbone organique de 20%.

Au sujet de la fraction de carbone organique dans les sédiments, la valeur par défaut est issue du document U.S. Geologic Survey Investigation Report 83-533 (1983) et est obtenue par des mesures sur les sédiments d'eau de surface.

- **Densité de particules du sol 'rhos_s'**

Il est généralement admis que *rhos_s* = 2600 kg/m³. Elle provient du Soils Screening Guidance (1993) [8]. CalTOX utilise cette valeur avec un CV de 0,05. Il semble pourtant que la densité de particules puisse être établie par région française. En effet, *rhos_s* = 1150 kg/m³ et 2140 kg/m³ respectivement pour Angers et Toulouse [24].

Il apparaît aussi que la valeur de densité de particules est la même pour le sol, l'aquifère et les sédiments.

E) Données relatives à la flore présente sur le site

Les paramètres d'entrée à renseigner concernent les différentes parties des plantes (tige, racines, feuilles).

- **Épaisseur moyenne de la cuticule '*d_cuticule*'**

La cuticule est un revêtement cireux protégeant les parties vertes des plantes contre les radiations excessives. Elle est plus ou moins épaisse et plus ou moins étanche selon les espèces végétales. CalTOX considère une épaisseur moyenne de $2 \cdot 10^{-6}$ m avec un CV de 0,20.

- **Fraction d'eau dans la feuille '*beta_leaf*'**

CalTOX accepte un maximum de 0,90 et propose une valeur par défaut de 0,50 avec un CV de 0,5. Mais ce paramètre est dépendant de l'espèce végétale. Par exemple, la laitue contient jusqu'à 97% d'eau. La plante ayant été utilisée par les développeurs de CalTOX n'est pas précisée dans les documents. De plus, la teneur en eau dans la feuille varie avec la période de l'année (influences de la température et de la disponibilité de l'eau) et du lieu géographique. On peut raisonnablement penser qu'elle est plus importante pour les espèces cultivées dans un jardin. De plus, il semble qu'une teneur de 50% se rapproche de celle observée dans les troncs d'arbres [24].

'*beta_leaf*' peut être calculé comme suit :

$$beta_leaf = water\ content \times rho_leaf / rho_water$$

Avec: *water content* = 0,8 kg (eau) / kg (feuilles fraîches) [16]

$$rho_water = 1000\ kg/m^3$$

$$rho_leaf = 820\ kg/m^3\ (d'après\ CalTOX)$$

- **Fraction d'eau dans la tige '*beta_stem*'**

CalTOX admet un minimum de $9 \cdot 10^{-1}$. La valeur par défaut est de $4 \cdot 10^{-1}$ avec CV=0,15. TRIM.FaTE donne une valeur de $8 \cdot 10^{-1}$.

- **Fraction d'eau dans les racines '*beta_root*'**

CalTOX accepte un maximum de $9 \cdot 10^{-1}$ et fournit par défaut une valeur de $6 \cdot 10^{-1}$ avec un CV de 0,15. Bien que le végétal de référence ne soit pas connu, la fiabilité de cette valeur est corroborée par les valeurs de TRIM et de Trapp [31], respectivement $8 \cdot 10^{-1}$ et $8,9 \cdot 10^{-1}$ pour la carotte.

- **Fraction d'air dans la feuille '*alpha_leaf*'**

CalTOX accepte un maximum de 0,40. Aucune autre valeur n'a été trouvée.

- **Fraction de lipide dans la feuille '*lipid_leaf*'**

CalTOX propose par défaut une valeur de 0,002 avec un CV de 0,20. TRIM propose 0,00224. Les valeurs sont donc très proches mais TRIM donne une valeur à cinq chiffres après la virgule.

'lipid_leaf' peut également être calculé comme suit:

$$\text{lipid_leaf} = \text{lipid content of leaf} \times \text{rho_leaf} / \text{rho_lipid}$$

- **One-sided Leaf Area Index 'LAI'**

Le LAI est l'indice de surface foliaire. C'est le rapport de la superficie du feuillage vert à la superficie du sol. Le LAI se calcule comme étant la moitié de la surface totale occupée par les deux côtés de la feuille, par unité de surface au sol.

CalTOX calcule LAI avec la formule suivante:

$$\text{LAI} = 3,9 \times \text{veg_prod}^{0,685}$$

La documentation de TRIM [16] permet de lister les LAI suivants suivant les espèces végétales.

Tableau 16 : valeurs de LAI selon l'espèce végétale

Espèce végétale	LAI
arbres à feuilles caduques	3,4
conifères	5
herbe	5
« agriculture »	2

Le LAI n'excède pas la valeur de 5. De plus, un LAI de 1 signifie que la plante ne possède qu'une couche de feuilles juxtaposées les unes à côté des autres et qu'aucune ne recouvre une autre. Pour la plupart des plantes, le LAI augmente avec la croissance de la plante et diminue avec la sénescence.

- **Production végétale journalière 'veg_prod'**

Ce paramètre est utilisé pour calculer la concentration en polluants dans les végétaux liés aux dépôts atmosphériques particuliers.

CalTOX propose par défaut 0,9 kg/m².an avec un CV de 1 et un maximum de 3 kg/(m².an) est possible.

La littérature propose de nombreuses valeurs, récapitulées dans le tableau 17.

Tableau 17 : production végétale journalière selon l'espèce végétale

'veg_prod' (kg/(m².an))	Espèce végétale	Source
0,14	légumes feuilles	Rommens, 1997 pour l'IRSN
0,16	légumes fruits	Rommens, 1997 pour l'IRSN
0,57	légumes	INERIS
2,24	fruits et légumes exposés	HHRAP
> 3	laitue	[24]
10,52	légumes fruits	Shor pour HHRAP

Pour des légumes fruits, on constate que veg_prod peut varier d'un facteur 10 suivant les auteurs.

- **Masses volumiques de la tige, de la feuille et des racines fraîches** *'rho_stem'*, *'rho_leaf'* et *'rho_root'*

Les valeurs proposées par CalTOX sont fiables car leur CV est faible et le logiciel TRIM utilise pratiquement les mêmes.

Tableau 18 : masses volumiques des différentes parties de la plante

	CalTOX	TRIM.FaTE
rho_stem	830 avec CV = 0,20	830
rho_leaf	820 avec CV = 0,30	716
rho_root	820 avec CV = 0,05	820

CalTOX choisit la valeur de *'rho_stem'* comme étant le maximum entre la valeur renseignée par l'utilisateur et le résultat du calcul $\beta_{stem} \times 1000 + 15$.

- **Facteur d'atténuation végétale** *'atf_leaf'*

L'atténuation végétale est due au fait que le végétal métabolise le polluant, ce dernier devenant alors moins toxique. *'Atf_leaf'* est utilisé par CalTOX pour calculer une fraction d'interception d'éléments secs se déposant sur la feuille.

CalTOX et TRIM propose la même valeur de 2,90 m²/kg. J. Charbonnel [24] estime que c'est un « paramètre difficilement transposable en France ». En effet, aucune autre valeur n'a pu être trouvée.

- **Fraction de la surface des stomates par rapport à la surface de la feuille** *'na_st'*

Les stomates sont des orifices situés sur la face inférieure de la feuille. Ils permettent les échanges gazeux avec l'atmosphère et nécessaires à la respiration et à la photosynthèse.

CalTOX propose une valeur de 7.10^{-3} avec CV = 0,20. Trapp propose 3.10^{-3} [9].

- **Épaisseur effective des pores des stomates** *'del_st'*

Les valeurs de CalTOX ($2,5.10^{-5}$ m avec CV=0,20) et de Trapp (5.10^{-6}) [9] diffèrent d'un facteur 10.

- **Épaisseur de la couche limite d'air sur les feuilles** *'del_a'*

Un minimum non nul est requis pour définir l'épaisseur de la couche limite.

CalTOX propose par défaut 2.10^{-3} m avec un CV = 0,1 tandis que Trapp propose 1.10^{-3} m [9].

- **Fraction d'interception humide** *'IF_w'*

Ce paramètre reflète la capacité de la feuille à retenir les particules à sa surface.

La valeur par défaut de CalTOX (10^{-1} avec un CV à 0,10) est celle retenue dans l'étude de cas.

D'autres valeurs ont été trouvées et sont présentées dans le tableau 19.

Tableau 19 : valeurs de fraction d'interception humide

paramètre	valeur	source
	10^{-1}	CalTOX
	$3,9.10^{-1}$ (valeur moyenne)	US-EPA [24]
	$5,3.10^{-2}$ (fruits exposés)	US-EPA [24]
	$9,82.10^{-1}$ (légumes exposés)	US-EPA [24]
IF_w	4.10^{-1} (légumes)	INERIS [14]
	$5,0.10^{-1}$ (herbe)	INERIS [5]
	$5,3.10^{-2}$ (fruits)	INERIS [5]
	$2,15.10^{-1}$ (légumes feuilles)	INERIS [5]
	$9,96.10^{-1}$ (légumes fruits)	INERIS [5]

- les légumes feuilles sont les choux-fleurs, brocolis, choux rouges, choux de Bruxelles, laitues, épinards, bettes, endives, haricots verts, poireaux, fenouil, persil, artichaut
- les légumes fruits sont les citrouilles, aubergines, poivrons, tomates, concombres, courgettes, petits pois, lentille, haricots blancs, petits pois secs
- les fruits sont les amandes, noix, poires, pommes, pêches, cerises, pruneaux, abricots, raisins, fraises, framboises et figues

La bioconcentration dans les végétaux feuillus (salade, chou) est différente de celle dans les végétaux fruits (tomate, haricot vert), elle-même différente de celle dans les fruits. C'est une donnée expérimentale [3].

CalTOX accepte un maximum de 9.10^{-1} alors qu'une des valeurs proposées par l'INERIS est supérieure.

La fraction interceptée par les feuilles des végétaux dépend de la morphologie de la plante. Il apparaît que les légumes ont une fraction d'interception plus grande que les fruits et ce, quel que soit la source prise en référence.

F) La surface du site 'area'

La surface du site impacté par les rejets atmosphériques est un paramètre qui intervient dans le calcul des volumes de chacun des compartiments.

Comme d'après les concepteurs du logiciel il faut faire attention à l'ordre de grandeur de la surface du site, des simulations faisant varier la surface du site ont été réalisées. Ainsi, plus la surface du site diminue, plus la dose d'exposition augmente. Les concentrations en polluant dans les compartiments environnementaux sont inversement proportionnelles à la surface du terrain.

Il en ressort aussi qu'il existe (pour l'exemple traité) une valeur en dessous de laquelle CalTOX ne soit plus capable de faire de bons calculs. Quand 'area' est inférieur ou égal à 65m^2 (valeur qui est bien en dessous de la limite de 1000m^2 donnée par les concepteurs) deux avertissements s'activent : '*concentration in surface water exceeds solubility*' et '*concentration in sediment-zone water exceeds solubility*'.

3.2.3 Paramètres d'exposition

- **Quantité de sol ingérée par jour 'Is'**

On estime classiquement qu'un adulte ingère 50 mg de sol par jour (soit $7,14.10^{-7}$ kg/(kg.j)). Calabrese *et al.* (1990), a effectué des mesures qui indiquaient aussi une ingestion d'environ 50 mg de sol par jour chez un adulte. Cette valeur a été obtenue sans

distinction du type d'activité et du temps passé à l'intérieur ou à l'extérieur d'un bâtiment. Dans son guide pour l'évaluation des risques, l'US-EPA (1998) propose comme valeur par défaut 50 mg de sol par jour dans un scénario résidentiel [14]. On trouve d'ailleurs dans la littérature, respectivement, une valeur de 20 mg/j ($2,86 \cdot 10^{-7}$ kg/(kg.j)) et une valeur de 604 mg/j ($8,63 \cdot 10^{-6}$ kg/(kg.j)) pour un scénario dit minorant et majorant. [32]

La quantité de sol ingérée est calculée comme suit :

$$\text{Ingestion de sol} = \text{toggle 'direct soil ingestion'} \times \text{Isl} / \text{BW}$$

Le résultat de ce calcul est ensuite utilisé par le logiciel pour calculer la dose d'exposition par ingestion de sol.

Ainsi, lorsque 'Isl' est plus faible, la dose d'exposition par ingestion de poussières intérieures et extérieures (terme 'household soil' sous CalTOX) est plus petite. Le cas contraire est observé quand Isl est plus grand. Cependant, dans le cas traité, l'ingestion de sol reste toujours négligeable devant les autres vecteurs d'exposition.

- **Quantité de céréales ingérées par jour 'lg'**

Faute d'informations concernant les céréales seules, 'lg' est considéré comme étant l'ensemble des produits céréaliers consommés. L'enquête INCA de 1999 a fourni une valeur plus faible que CalTOX ($3,51 \cdot 10^{-3}$ kg/(kg.j) contre $3,7 \cdot 10^{-2}$ kg/(kg.j) dans CalTOX). À noter, l'arsenic inorganique est plus probablement retrouvé dans les céréales que dans les fruits et légumes. Tenir compte de l'ingestion de céréales pour le calcul de la dose d'exposition par ingestion est donc pertinent [33].

- **Fraction d'eau souterraine et d'eau de surface utilisée 'fw_gw' et 'fw_sw'**

Ces deux paramètres permettent de prendre en compte la provenance de l'eau d'alimentation des animaux, de l'eau consommée par la cible et de l'eau utilisée pour l'irrigation.

Considérer que l'eau du robinet ingérée provient par exemple d'un captage souterrain, fait que CalTOX calcule une dose d'exposition par ingestion d'eau provenant d'eau souterraine. Le même raisonnement est fait pour l'eau de surface. Cependant, la dose totale d'exposition par ingestion d'eau de surface est la somme de celle liée à l'ingestion d'eau du robinet et celle liée à l'ingestion accidentelle d'eau lors de la baignade.

- **Fraction de polluants dans les eaux d'irrigation transférés dans le sol 'R_irr'**

Par défaut, CalTOX estime à 25% la part de contaminants présents dans l'eau d'irrigation et supposée être transférés au sol. L'INERIS estime que la «paramètre est difficile à définir» [23].

- **Fraction de fruits et légumes exposés (aériens) 'fabv_grd_v'**

En faisant varier ce paramètre, on privilégie ou pas les légumes racinaires par rapport aux aériens.

- **Ingestion d'eau durant la baignade**

Pour estimer la part d'ingestion d'eau durant la baignade, il est nécessaire de connaître les paramètres durée de la baignade (ou autre activité nautique) '*E_{tsw}*', quantité d'eau superficielle ingérée pendant la baignade '*I_{sww}*' et fréquence des baignades '*E_{fsw}*'. Ce paramètre est exprimé en j/an. Pour l'étude de cas, on a considéré que l'expression en épisodes/an convenait. En effet, la valeur propre au logiciel est de 15 j/an. Une publication de l'INSEE (Institut National de la Statistique et des Études Économiques) [34] indique que les Français passent en moyenne 13,2 nuitées de séjour à la mer par an.

- **Eau consommée**

- Quantité d'eau ingérée '*I_{fl}*'

Dans CalTOX, le paramètre quantité de liquide ingéré par jour '*I_{fl}*' sert uniquement à calculer la dose d'exposition liée à l'ingestion d'eau. CalTOX précise le terme '*tap*' qui signifie que l'eau vient du robinet.

Ne faut-il alors considérer que l'eau du robinet dans '*I_{fl}*'?

L'enquête INCA 99 permet de comparer les différentes origines d'eau consommées.

Tableau 20 : quantités d'eau ingérée

Paramètre	CalTOX	INCA 99 (eau du réseau)	INCA 99 (tous liquides)	OMS ³
I _{fl} (L/kg.j)	0,0220	0,0057	0,0157	0,0285

Les valeurs ont été calculées pour un individu de 70 kg à partir des données sur la consommation quotidienne moyenne pour les seuls adultes consommateurs.

'Tous liquides' incluent l'eau du réseau, l'eau minérale naturelle et l'eau de source.

La valeur trouvée et qui se rapproche le plus de celle proposée par CalTOX par défaut est celle de l'OMS où l'on estime une ingestion de 2 L d'eau (toutes eaux) par jour et par personne. Si on regarde la consommation d'eau de robinet seule estimée par l'enquête INCA, '*I_{fl}*' est alors diminué d'un facteur 5 (moins de 500 mL d'eau bue par jour).

- Origine de l'eau

CalTOX permettant de prendre en compte l'origine de l'eau consommée par la cible, les '*toggles*' ont été sélectionnés ainsi :

Tableau 21 : choix de la provenance de l'eau sous CalTOX

TOGGLE	Cas 1	Cas 2	Cas 3
Eau du robinet provenant d'une source souterraine	0	1	1
Eau du robinet provenant d'une source superficielle	1	0	1
Ingestion d'eau du robinet	1	1	1

Dans les simulations réalisées, les parts relatives à l'ingestion d'eau du robinet étaient très faibles (de l'ordre de 10⁻⁷ voire 10⁻¹⁰) et négligeables par rapport aux autres facteurs d'exposition, donc n'avaient pas de conséquence notable sur la valeur du résultat, autrement dit, la provenance de l'eau influençait très peu la détermination de la dose d'exposition totale.

³ OMS : Organisation Mondiale de la Santé

- **Paramètres relatifs à l'autoconsommation**

La fraction d'aliments ingérés produits localement correspond à la proportion d'aliments entrant dans le régime alimentaire et ayant subi l'impact des émissions atmosphériques du polluant. Les valeurs des parts d'aliments consommés autoproduits sont fonction du type de scénario envisagé.

On peut poser comme hypothèse qu'en zone urbaine, la part de produits locaux équivaut à la part auto produite par les ménages, les urbains compensant la non production par des achats de produits cultivés ou élevés localement [35].

J. Charbonnel récapitule des données quant à la part de l'autoconsommation dans les apports alimentaires (issues d'une étude réalisée par l'INSEE en 1991 sur la consommation et les lieux d'achat des produits alimentaires) et souligne un contraste entre les villes et les campagnes. De plus, on observe que les données moyennes de CalTOX (représentatives de Etats-Unis) sont proches de celles de la région Centre.

Tableau 22 : proportions de produits locaux consommés selon les régions

	Région Centre	Région Parisienne	Méditerranée	États-Unis (CalTOX)
Proportion de produits locaux	23,9%	5,9%	12,1%	24%

- **Paramètres relatifs aux animaux**

On a vu précédemment que la répartition de la contribution des différents médias à la dose d'exposition totale à l'arsenic par ingestion mettait en avant les milieux d'exposition viande et lait.

Les concentrations de polluant dans ces milieux sont reliés directement aux paramètres physiologiques des animaux (taux de respiration), à leurs comportements (le fait de paître sur la zone d'étude, la quantité de pâturage, d'eau et de sol ingérées) et à l'origine de l'eau qui leur est distribuée (eau souterraine ou eau superficielle).

La recherche sur les valeurs disponibles dans la littérature permet de souligner certains points. Les données relatives à l'ingestion de sol par les volailles sont très peu nombreuses et très divergentes [14]. En effet, alors que le guide de l'HHRAP et l'INERIS s'accordent sur une valeur autour de 0,022 kg/j pour HHRAP et 0,020 pour l'INERIS, CalTOX estime que la quantité de sol ingérée par les volailles est plutôt de 0,000013 kg/j. Dans l'étude de cas, ce paramètre n'étant pas influent, la dose d'exposition calculée n'est pas affectée par un changement de valeurs de '*ish*'. Par contre, la concentration de polluant dans le milieu d'exposition œufs varie de 10^2 suivant la valeur renseignée, la valeur propre au modèle engendrant une concentration plus faible dans les œufs.

Les besoins en eau des animaux de bétail sont naturellement fonction de la température ambiante, du poids et de l'état de l'animal (gestation ou pas et production laitière ou pas) . Roy *et al.* (1993) [36] a montré que les besoins hydriques d'un bovin laitier varient de 3,08 L d'eau / kg de matière sèche à 5°C à 7,33 L d'eau / kg de matière sèche à 32°C. Jusqu'à 15°C, la quantité d'eau est inférieure à 4 L.

CalTOX pose l'hypothèse que la quantité d'eau ingérée est identique pour le bétail laitier et non laitier, soit 35 L/j avec un CV de 0,20. Roy *et al.* (1993) [36] estime qu'une vache laitière consomme 2,8 L d'eau de plus par jour qu'une vache non laitière. De plus, il est estimé qu'une vache de 350 kg (poids vif) a besoin au minimum de 17,3 L d'eau par jour à une température de extérieure de 10°C soit 2 fois moins que la quantité par défaut annoncée par CalTOX.

N'étant pas des paramètres influents, le choix de l'une ou l'autre valeur n'affecte pas grandement le calcul de la dose d'exposition. Quant aux concentrations dans les milieux d'exposition viande et lait, les ordres de grandeur sont conservés.

La quantité de pâturage ingérée est un paramètre utilisé pour caractériser l'alimentation solide du bétail laitier (paramètre nommé sous CalTOX *lvdc*), du bétail non laitier (*lvbc*) mais aussi des volailles (*lvh*). Dans ce dernier cas, il faut comprendre le terme 'pasture' comme étant des céréales. Pour les bovins, 'pasture' correspond bien à de l'herbe.

Les valeurs trouvées pour ces paramètres sont récapitulées dans le tableau 23.

Tableau 23 : valeurs des paramètres '*lvdc*', '*lvbc*' et '*lvh*'

Paramètre	Valeur	Source
<i>lvdc</i> (kg /j)	85 avec CV=0,20	CalTOX
	60	INERIS
<i>lvbc</i> (kg/j)	60 avec CV=0,40	CalTOX
	80	INERIS
<i>lvh</i> (kg/j)	0,12 avec CV=0,04	CalTOX
	0,20 (céréales)	INERIS / HHRAP

3.3 Détermination des vecteurs d'expositions prépondérants à l'ingestion d'arsenic

Il apparaît que la quasi-totalité de l'exposition à l'arsenic est d'origine alimentaire. Plus précisément, il ressort que les fruits & légumes exposés à la contamination aérienne, puis le poisson et dans une moindre mesure la viande et le lait, contribuent à la dose d'exposition par ingestion.

La contribution de chaque catégorie de produits ingérés à la dose d'exposition a été testé en faisant affectant d'autres valeurs aux paramètres révélés sensibles. Le choix s'est porté sur la conséquence de majorer le risque (*risk* plus élevé).

Ainsi, une hausse de la valeur pour '*Kpa*', '*BCF*', '*rhob_a*', '*v_d*', '*f_arw*', '*lg*', '*fabv_grd_v*' et les parts auto-produites ne changent pas l'ordre de contribution des différentes catégories de produits.

Par contre, le fait d'affecter la valeur maximale trouvée pour les '*Kd*', '*Bk*' et '*Bt*' modifie l'ordre de contribution.

Tableau 24 : modification de l'ordre de contribution des vecteurs à la dose d'exposition par remplacement des valeurs de paramètres

Vecteurs d'exposition par ingestion	Ordre de contribution à la dose d'exposition totale (' <i>Kd</i> ' plus grand)	Ordre de contribution à la dose d'exposition totale (' <i>Bk</i> ' plus grand)	Ordre de contribution à la dose d'exposition totale (' <i>Bt</i> ' plus grand)
Végétaux exposés	1	1	1
Viande	2	4	2
Lait	3	2	4
Poisson	4	3	3

A partir de ces résultats, on peut penser que les coefficients de partition jouent un rôle mineur dans la contamination des poissons. Quant au facteur de biotransformation alimentation bovine/lait, il n'est pas étonnant de voir qu'il a un impact sur la contribution à la dose d'exposition liée à l'ingestion de lait. De la même manière, une augmentation du coefficient de biotransformation alimentation bovine/lait place l'ingestion de lait en deuxième place des vecteurs d'exposition contribuant le plus à la dose d'exposition par ingestion d'arsenic.

Dans tous les cas, l'ingestion de végétaux exposés est le vecteur d'exposition prépondérant. L'ingestion de sol et d'eau par la cible est négligeable devant les autres vecteurs d'exposition de produits alimentaires.

La concentration en arsenic dans les végétaux dépend du contenu du sol, de la contamination de l'eau et de l'usage de pesticides [37], il est donc intéressant de s'intéresser aux paramètres du sol.

Par ailleurs, connaître l'impact de la nature du sol sur les résultats peut être intéressant dans l'optique d'un travail d'extrapolation à plusieurs contextes géologiques.

3.4 Impact de la modification de la valeur de certains paramètres

3.4.1 Impact de la modification des valeurs des paramètres du site sur l'exposition

Le transfert des éléments du sol aux plantes dépend de nombreux paramètres intrinsèques comme l'espèce mais aussi des paramètres physico-chimiques externes qui conditionnent la biodisponibilité des éléments. Cette notion qui intègre les facteurs sol, plante, climat, est complexe, ce qui rend difficile de prévoir, à priori, les flux d'éléments vers les plantes. Les « paramètres du sol » (annexe 6) regroupent dans ce mémoire les paramètres de CalTOX qui permettent de définir un type de région.

Le sol est un milieu récepteur de la pollution atmosphérique mais aussi vecteur de la contamination vers d'autres milieux. Ce sont les propriétés du sol qui conditionnent la partition du polluant entre les différentes phases du sol et son devenir. Les modes de transfert des polluants à partir du sol sont répertoriés dans le tableau 25.

Tableau 25 : modes de transferts des polluants à partir du sol

Milieu contaminé	Mode de transfert des polluants
Sol	Lixiviation
	Ruissellement, inondations
	Emission de poussières ou de particules dans l'atmosphère puis déposition sur le sol
	Emission sous forme gazeuse dans l'atmosphère puis dissolution et dépôt sur le sol
	Battement de la nappe contaminée

Rappelons qu'aucun paramètre du sol n'est retenu comme étant influent sur le résultat. Toutefois, comme il est apparu que l'ingestion de végétaux exposés contribue très fortement à la dose d'exposition à l'arsenic et comme les paramètres du sol interviennent dans la modélisation de la concentration de polluant dans les fruits et légumes, le modèle a été testé avec différents sols. En effet, rappelons ci-après les modes de contamination des végétaux à partir du sol.

Tableau 26 : modes de transferts des polluants du sol aux végétaux

Milieu contaminé	Mode de transfert des polluants à partir du sol
Végétaux	Prélèvement par les racines sous forme passive depuis le flux hydrique puis transfert vers les parties aériennes de la plante
	Emission de particules du sol dans l'atmosphère puis déposition sur les feuilles (paramètre 'rainsplash' pour CalTOX)
	Emission de gaz à partir du sol puis absorption par les feuilles

Des simulations ont été réalisées avec le sol argileux et sableux proposés par défaut par CalTOX. De plus, le mémoire de J. Charbonnel a permis de recueillir les valeurs caractéristiques des sols d'Angers, Toulouse et Grenoble. Cependant, suivant les villes,

des valeurs étaient manquantes. Par ailleurs, il a été posé comme hypothèse une absence d'apport d'eau sur le terrain (c'est une hypothèse par défaut de CalTOX qui est conservée). Les valeurs proposées par défaut par CalTOX ont été conservées lorsqu'il n'y avait pas de valeur proposée pour les villes. Les principaux résultats sont récapitulés en annexe 7.

- **Contribution des milieux d'exposition à la dose d'exposition**

Les simulations réalisées engendrent des DE différentes suivant les sols étudiés.

Pour les sols d'Angers, de Grenoble et de Toulouse, la dose d'exposition totale est due à l'ingestion conjointe de produits exposés et de poisson à hauteur de plus de 99% (pratiquement autant pour le poisson que pour les végétaux). La contribution des vecteurs ingestion de viande, de lait et d'eau à la dose d'exposition est comprise pour chacun entre 0,04% et 0,07%.

Pour les sols sableux et argileux, la DE totale calculée est due à près de 95% à la DE par ingestion de produits exposés contaminés.

- **Concentration en arsenic dans les milieux d'exposition**

Bien que toutes les concentrations soient modifiées, il est plus pertinent de s'intéresser aux changements d'ordres de grandeur des concentrations. Ainsi, les paramètres du sol des villes font augmenter les concentrations en polluant dans les poussières intérieures et extérieures. Pour Toulouse et Angers, l'influence du sol superficiel est aussi réelle sur la contamination des produits exposés, de la viande et du lait. De même, pour les sols représentatifs de ces villes, on constate un apport de contaminant par l'eau souterraine et qui touche l'eau de robinet, les végétaux protégés ou non, la viande, le lait et les œufs. Les contributions de l'eau de surface, du sol racinaire et de l'air (gaz) à la contamination des différents milieux sont peu influencées par le changement des valeurs de paramètres du sol.

La comparaison avec les sols sableux et argileux révèle l'impact de la modification des paramètres du sol sur la contamination des milieux par l'eau souterraine (variation d'un facteur 100). Ainsi, la contribution de l'eau souterraine à la contamination des différents milieux est bien moindre avec les paramètres des sols sableux et argileux.

Finalement, bien que les paramètres du sol ne soient pas sensibles, on constate qu'en changeant l'ensemble des paramètres caractéristiques d'un site (ici au niveau d'une région), une variation de la DE apparaît.

3.4.2 Impact de la modification de la valeur de 'd_s' sur l'exposition

- **Valeurs de 'd_s'**

Tableau 27 : épaisseur de sol superficiel minimale requise selon la durée de demi-vie dans le sol superficiel choisie

d_s (m)	Thalf_s (j)
0,3	10
0,31	100
0,58	n/a
0,96	1000
3,1	10000
9,6	100000
30	1000000

Au-delà du mètre, l'existence d'une couche de sol racinaire devient moins plausible. Pourtant, CalTOX autorise des épaisseurs d'autant plus importantes que la durée de demi-vie dans la zone racinaire est grande.

Pour l'étude de cas, il a été choisi de suivre CalTOX dans son raisonnement par défaut et de mettre toutes les durées de demi-vie à n/a. Cette hypothèse oblige alors l'évaluateur à attribuer une épaisseur de 0,58m minimum à la couche de sol racinaire.

L'utilisateur peut aussi choisir de mettre des durées de demi-vie très élevées (supérieur à 10^5) pour signifier que les phénomènes de dégradation ne sont pas considérés.

- **Impact sur la dose d'exposition**

Lorsque $d_s = 0,30$ alors $DE = 9,14 \cdot 10^{-5}$ mg/kg.j. Pour les autres épaisseurs de sol racinaire, $DE = 9,15 \cdot 10^{-5}$ mg/kg.j.

La contribution des milieux d'exposition à la dose d'exposition reste inchangée en pourcentage, l'ingestion de produits exposés contribuant à plus de 99% à la dose d'exposition totale.

- **résultats intermédiaires**

Les concentrations en polluant dans le sol superficiel, le sol racinaire et l'eau souterraine sont affectées par la modification de ' d_s '. Ces variations de concentration n'évoluent pas dans le même sens que l'épaisseur de sol.

Quand on s'intéresse de plus près à la contribution des compartiments à la contamination des milieux d'exposition (annexe 8), on constate que toutes les concentrations dans les milieux d'exposition sont modifiées par l'action du sol superficiel, du sol racinaire et des eaux souterraines. On remarque surtout que les eaux souterraines contaminent bien moins (variations de l'ordre de 10^2 à 10^4) les milieux d'exposition lorsque ' d_s ' est mis à une autre valeur que 0,58 m. Il faut savoir que la concentration de polluants dans les eaux souterraines est estimée à partir du flux de lixiviation issu de la couche profonde de sol.

3.4.3 Impact d'un apport d'eau au niveau du site sur l'exposition

On a vu que le ruissellement est un mode de transfert des polluants au niveau du sol. L'apport d'eau sur un site imperméabilisé donc sujet au phénomène de ruissellement est donc un paramètre à renseigner à priori avec précision. CalTOX calcule d'ailleurs une vitesse totale de ruissellement d'eau de surface ('*outflow*') en m/j.

$$outflow = inf\ low + runoff + rain \times (f_arw - evaporate)$$

Lorsqu'on affecte une valeur de 0 à '*inflow*', ce qui revient à considérer l'absence d'apport d'eau sur le site, alors la dose d'exposition est multipliée par 2,15. Si l'eau ne ruisselle pas alors elle peut atteindre les eaux superficielles pour les contaminer. CalTOX modifie par la suite la concentration en polluants dans le milieu d'exposition « eaux superficielles » et les doses d'expositions liées à l'ingestion d'eau par la cible et à l'ingestion des produits de la mer.

Lors des simulations réalisées avec les paramètres choisis relatifs au site étudié, '*inflow*' présentait une sensibilité locale. En effet, il s'avère que la valeur utilisée de la quantité d'eau apportée sur le site a des conséquences sur le résultat. Pour preuve, il suffit de mettre la valeur à zéro pour constater que la dose d'exposition totale augmente (liée à l'augmentation des concentrations dans les produits de la mer et de l'eau) et que les contributions des différents vecteurs d'exposition à la dose d'exposition sont modifiées. L'ingestion de végétaux exposés est aussi importante que l'ingestion de poissons (près

de 50% de contribution pour chacun des deux vecteurs). De plus, l'eau contribue à hauteur de 0,05% à la dose d'exposition (annexe 9).

3.4.4 Impact de l'utilisation d'eau pour l'irrigation sur l'exposition

Les 'toggles' 'use of ground water for irrigation' et 'use of surface water for irrigation' ont été mis à zéro successivement pour tester l'incidence de l'utilisation de l'eau pour l'irrigation.

Ainsi, pour une part semblable de végétaux exposés et de végétaux non exposés (valeur de 0,50 pour chacun des paramètres), on constate que la dose d'exposition dans les végétaux exposés est toujours plus importante que celle dans les végétaux protégés. Cependant, les doses calculées par le logiciel restent très inférieures par rapport aux doses d'exposition des autres milieux.

3.4.5 Impact des quantités d'aliments ingérés et de la part d'autoconsommation

Les équations suivant lesquelles sont calculées les quantités d'aliments autoproduits consommés par la cible sont récapitulées en annexe 10.

D'après les hypothèses de calcul de CalTOX, les doses d'exposition sont proportionnelles à la quantité d'aliments ingérés ainsi qu'à la part de l'autoconsommation dans les apports alimentaires. Il n'est donc pas étonnant de voir apparaître dans le classement des paramètres influents des paramètres comme 'lg', 'flocal_v' et 'fabv_grd_v'.

En faisant varier de plus et moins 10% les valeurs de 'lfv', 'lg', 'lmk', 'lmt', 'legg' et 'lfsh', aucune variation du résultat n'a été observé.

DISCUSSION

Lors de l'utilisation de CalTOX, d'autres « limites » sont apparues, liées pour certaines à des hypothèses sur les paramètres d'entrée et sur les transferts de pollution prises en compte par CalTOX et pour d'autres à des hypothèses retenues par l'évaluateur.

Le modèle s'est montré être sensible à de nombreux paramètres. L'origine de cette constatation est discutée dans les paragraphes suivants.

4.1 Hypothèses de CalTOX

4.1.1 Hypothèses de CalTOX sur les paramètres d'entrée

La **solubilité** dans l'eau 'S' ne peut pas être égale à zéro. Si tel est le cas alors, un avertissement apparaît. Pour le fonctionnement de CalTOX, la valeur de 0,1 doit obligatoirement être utilisée. Or, l'arsenic métal est insoluble dans l'eau. La directive 67/548/CEE définit qu'une substance chimique est insoluble dans l'eau si sa solubilité dans l'eau est inférieure à 1 mg/L [18]. En affectant la valeur de 0,1 mol/m³ (soit 7 mg/L) au paramètre 'S', on considère alors que la substance est soluble.

CalTOX affecte une valeur par défaut à la **température de fusion** 'Tm' de zéro. Or, l'ATSDR par exemple fournit une valeur de 1090 K. Cependant, cela n'a pas eu de conséquence sur les calculs réalisés.

CalTOX considère une exposition globale par ingestion de **viande**. Il n'y pas de distinction entre la viande bovine, la viande de porc et la viande de volaille.

Par ailleurs, il faut bien faire attention à la définition des couches du sol. En effet, CalTOX demande à l'évaluateur de renseigner bon nombre de paramètres pour chacune des **couches du sol**. L'INERIS ne faisant pas hypothèse de plusieurs niveaux de sols, donne une seule valeur pour la teneur en carbone organique ('*foc*' sous CalTOX), une valeur pour la porosité totale (que l'on assimile à la teneur en air, '*beta*' sous CalTOX) et une valeur de teneur en eau ('*alpha*' sous CalTOX). Or, en reprenant les valeurs de l'INERIS ('*foc*'=0,03, '*beta*'=0,20 et '*alpha*'=0,50), on se heurte au fait que certaines valeurs dépassent le maximum autorisé par le logiciel ; '*alpha_g*' et '*alpha_s*' étant au plus égal à 0,40 dans CalTOX.

Selon les sources, la définition de la couche de **sol non saturé** (chargé d'air) diffère. Le BRGM définit le sol non saturé comme étant « l'ensemble des niveaux du sous-sol et du sol situés au-dessus de la nappe ; ainsi nommées car leur porosité contient tout ou partie d'air » [1].

Enfin on remarquera que CalTOX utilise un mélange d'**unités** du Système International et des unités bien moins pratiques ou courantes comme l'expression des durées en minute, heure, jour ou année, celle des volumes en litre ou en m³ suivant les paramètres et les vitesses en m/j. De nombreux paramètres sont à exprimés en kg de poids corporel de la cible considérée. La solubilité s'exprime dans le système international en kg/m³, CalTOX l'exprime en mol/m³. En bref, l'évaluateur doit être attentif aux différentes unités.

4.1.2 Hypothèses de CalTOX sur les mécanismes de transfert de la pollution

CalTOX ne prend pas compte le **lavage des fruits & légumes** avant consommation, cela peut entraîner une surestimation de la concentration de polluant dans les végétaux.

Morgan (1999) soutient qu'une fois le métal présent dans la nourriture, sa concentration sera rarement modifiée par les procédés de préparations culinaires. Mais dans certains cas, le lavage de l'aliment peut entraîner une diminution de la teneur en métal [37].

Seule l'eau de surface peut contaminer **les produits de la mer**.

La **fraction d'eau** souterraine ou de surface renseignée par l'évaluateur est la même que ce soit pour irriguer ou pour subvenir aux besoins des animaux.

La **contamination des végétaux** donc de l'herbe broutée par les bovins est reliée à la contamination du sol racinaire. Celui-ci n'est pas directement exposé aux retombées atmosphériques. Ainsi, comme le souligne R. Bonnard, [38] la concentration en polluant peut y être moindre par rapport au sol superficiel où reposent réellement les racines de l'herbe. Cela entraîne donc une éventuelle sous-estimation du risque.

La **couche de sol végétal** n'est pas directement contaminée par les dépôts atmosphériques mais par diffusion et lixiviation de la pollution à partir de la couche superficielle.

L'évaluation de l'exposition par ingestion ne tient pas compte du **budget espace-temps** (paramètres '*Etai*', '*Etao*' et '*Etri*'), de la fréquence d'exposition de la peau au sol et de la quantité de poussières à l'intérieur.

Ainsi, par exemple, la définition de la quantité de sol ingérée par jour ne tient pas compte du type d'activité de la cible. C'est à l'utilisateur de choisir une valeur selon la décision de mener une évaluation majorante, moyenne ou minorante de l'exposition au polluant.

Le paramètre '*Efs*' permet d'exclure des jours de l'année où la possibilité pour la cible d'être en contact avec le sol est nulle. Pourtant, il n'est pas faux de penser que la cible puisse mettre à la bouche du sol qui se serait déposé sur sa peau.

Bien que pour CalTOX le paramètre '*dust_in*' n'intervienne que dans l'exposition par inhalation, on pourrait discuter autour de la possibilité pour la poussière de se déposer sur le sol de la maison et ensuite être ingérée par la cible. Une étude de Wolz *et al.* [39] porte

sur les teneurs en arsenic dans les sols et poussières de maisons. On en retient que les tapis et autres surfaces non lisses de la maison (dans l'entrée, les chambres) sont des terrains propices de dépôt de sol et poussières ingérables accidentellement et de contact surtout par les enfants. La quantité d'arsenic contenue dans les échantillons de sol et poussières analysés était telle que l'exposition par ingestion d'arsenic des enfants âgés d'un an et moins était réelle. Par ailleurs, l'INERIS estime que « la fraction de sol dans les poussières dans l'air intérieur » (donc susceptible de se déposer sur une surface [14]) n'est pas négligeable puisque de 80%.

4.2 Méthodes d'analyse de sensibilité

4.2.1 Limites du module d'analyse de sensibilité de CalTOX

Dans la documentation accompagnant le logiciel, il n'est pas question de manière détaillée du fonctionnement du module d'analyse de sensibilité de CalTOX. Cela apporte donc un manque de transparence et les interrogations soulevées lors de son utilisation ne trouvent pas de réponse. Ainsi, on ne sait pas à partir de quel indice de sensibilité, il est vraiment pertinent de dire qu'un paramètre contribue à la variabilité du résultat.

De plus, les valeurs toxicologiques de référence sont imputées par défaut d'un CV de 0,1 sans que l'utilisateur puisse en changer. On remarquera que le module a estimé que le paramètre 'TSCF' était sensible alors que 'Kow' ne l'était pas. Or, ces deux paramètres sont liés. Cela s'explique par le fait que la dépendance entre les paramètres d'entrée n'est pas prise en compte.

Par ailleurs, un paramètre jugé influent par cette méthode ne le sera réellement que si la gamme de variation plausible des valeurs prises par le paramètre permet de faire varier le résultat. En effet, on ne pouvait pas se contenter de considérer la sensibilité locale car cela serait revenu à ne pas tenir compte de la variabilité des paramètres.

Ensuite, les variables de sortie sur lesquelles on peut faire fonctionner le module de sensibilité de CalTOX se limitent à l'excès de risque individuel et à l'indice de risque.

Enfin, dans ce mémoire, on ne pouvait pas comparer les scores de sensibilité puisque cela nécessite l'utilisation de CV que l'on n'a pas lorsque les valeurs testées sont autres que celles propres au logiciel.

4.2.2 Limites de la méthode du calcul de l'indice de sensibilité

Le calcul de l'IS utilisant comme dénominateur commun D_{max} présente l'inconvénient suivant : lorsque deux paramètres présentent une étendue du risque calculé égale, l'indice de sensibilité est plus faible pour le paramètre qui a le D_{max} le plus élevé. Ainsi, le classement ne représente pas les paramètres selon leur influence sur le risque puisque qu'un paramètre donnant une valeur d'ERI forte peut se trouver en bas de classement [9]. Le classement des paramètres selon leur IS peut être peu représentatif de la réalité dans la mesure où pour certains calculs, des valeurs extrêmes donc probablement peu rencontrées ont été utilisées.

4.3 Limites des méthodes d'obtentions des plages de variation acceptables pour les paramètres

- **Méthode utilisant le CV**

Par cette méthode, des valeurs minimales négatives donc non exploitables peuvent apparaître. Par ailleurs, il se peut que les valeurs ainsi calculées soient d'un ordre de grandeur tel qu'elles sont non plausibles. Leur utilisation peut alors entraîner des résultats divergents et erronés, comme dans le cas du paramètre 'K_{pa}' où selon les

minima et maxima calculés, le classement des paramètres selon l'indice de sensibilité est modifié. Pour ce paramètre, il n'a pas été trouvé dans la littérature de valeur aussi grande que le maximum calculé avec cette méthode.

- **Méthode des + et – 10%**

Cette méthode ne permet pas toujours de balayer toute la gamme de variation d'un paramètre. Au contraire, elle peut aussi faire apparaître des valeurs peu probables.

4.4 Paramètres à renseigner avec précision pour l'arsenic

Les critères permettant de hiérarchiser les paramètres pour lesquels des investigations supplémentaires peuvent apporter une plus value sont :

- paramètres retenus comme étant influents le résultat
- paramètres dont la connaissance permettrait de réduire les incertitudes

Les milieux d'exposition qui contribuent le plus à l'ingestion d'arsenic sont, pour rappel, les végétaux exposés, la viande, le lait et le poisson. Dans le classement des paramètres sensibles, on retrouve des paramètres du paysage et notamment météorologiques qui influencent le comportement et le devenir du polluant dans l'environnement, des paramètres physico-chimiques relatifs aux transferts de l'arsenic dans les végétaux, la viande, le lait et le poisson. Enfin, les paramètres d'exposition humaine influents sont surtout ceux qui donnent les parts locales d'aliments consommés.

Dans les simulations réalisées par Hertwich *et al.* [40], les paramètres physico-chimiques contribuaient le plus aux variations observées dans les résultats. Quant aux paramètres du site, ils étaient peu déterminants dans l'évaluation du risque. Or, dans ce mémoire, on a vu que le fait de changer la valeur de quelques paramètres du site (*'inflow'* par exemple) suffisait à modifier d'un facteur 10 la dose d'exposition. De plus, les analyses de sensibilité menées à partir de CalTOX ont mis en évidence plus de paramètres du site influents.

Finalement, les paramètres qui méritent que des investigations supplémentaires soient menées sont listés dans les paragraphes suivants.

- **Les phénomènes de dégradation**

On a vu que l'épaisseur du sol racinaire est liée à la durée de demi-vie du polluant dans le sol racinaire. Si l'évaluateur de risques fait l'hypothèse d'une durée de demi-vies très longues, encore faut-il choisir une valeur. En effet, dans les simulations réalisées, les valeurs 10^4 , 10^5 et 10^6 ont été testées et ont fait apparaître des épaisseurs de sols supérieures au mètre et proportionnellement importantes à la durée de demi-vie appliquée. Des investigations supplémentaires sont nécessaires pour comprendre l'impact des paramètres de durées de demi-vie sur les calculs intermédiaires.

- **Les coefficients de partition '*Kd*'**

La modification seule de la valeur des '*Kd*' peut engendrer une variation de résultat d'un facteur de puissance 10. C'est le cas lorsque la plus faible valeur de '*Kd*' est utilisée (1,8), l'ERI étant alors fortement diminué. Par contre, plus la valeur de '*Kd*' est élevée, plus l'ERI calculé augmente tout en restant dans un ordre de grandeur comparable à celui trouvé avec la valeur initiale de '*Kd*'. Ainsi, le choix de la valeur de '*Kd*' doit être réfléchi.

- **Les coefficients de biotransformation**

Les valeurs trouvées diffèrent jusqu'à une puissance de 10^2 . Ces données d'entrée déterminées de manière expérimentale sont importantes puisqu'elles rentrent dans l'estimation de la contamination de toute la chaîne alimentaire. La différence entre la valeur par défaut de CalTOX du paramètre '*Bk*' et celle de guide de HHRAP ($Bk = 6 \cdot 10^{-3}$ j/kg) s'accompagne d'une variation de la contribution du milieu d'exposition « lait », celle-ci passant à 7,55% alors qu'elle n'est que de 0,08% lorsque la valeur propre au logiciel est utilisée.

- **Les paramètres du sol**

Le comportement d'un sol face à une pollution est affecté par les propriétés de celui-ci. Il est donc nécessaire de bien caractériser le sol, notamment renseigner correctement les teneurs en air, eau et matière organique, pour que la prévision du comportement du polluant soit la plus juste. D'ailleurs, ce sont ces paramètres qui diffèrent entre un sol argileux et un sol sableux pour CalTOX. De plus, les transferts de pollution entre les différentes couches du sol sont calculés à partir des fractions volumiques d'air, d'eau et de particules solides contenus dans le sol.

Dans les simulations effectuées, l'ensemble des paramètres du sol avait été modifié pour définir plusieurs contextes géographiques et géologiques.

En ce qui concerne l'épaisseur de la couche de sol racinaire, lors des simulations réalisées, on a vu qu'une valeur minimale de 0,58 m était nécessaire au fonctionnement du logiciel. Cette valeur reste plausible dans la mesure où elle est inférieure au mètre que peut atteindre les racines de certaines plantes. Par contre, elle peut ne pas correspondre à la réalité du site, la valeur initialement utilisée pour le site étant « classique ». CalTOX donne respectivement une valeur de 2 m et de 4 m pour les sols argileux et sableux californiens.

L'origine de l'affectation de cette valeur minimale a été recherchée dans les équations de CalTOX. Il en ressort que la valeur de 0,58 m est nécessaire aux calculs de transfert du polluant par le phénomène de diffusion. Mais des investigations supplémentaires sont nécessaires pour comprendre exactement les hypothèses retenues par le logiciel pour la diffusion du polluant.

On peut également s'interroger sur l'étendue de la gamme de valeurs prises par les paramètres du site. Ainsi, les plus fortes variations de valeurs touchent le paramètre '*recharge*' où la valeur prise pour la situation étudiée est plus de 22 fois inférieure à celle des villes françaises et le paramètre '*alpha_g*' pour lequel la valeur retenue pour le site étudié est près de 18 fois plus petite que celle de la ville d'Angers.

Les autres paramètres varient « seulement » d'un facteur 1,02 (pour la température) à 3,60 (pour l'épaisseur de la zone vadose).

Comment peut-on expliquer ces différences ? Les sources ayant permis de renseigner ces paramètres ne sont pas les mêmes. La recharge des eaux, dans le cas étudié, est estimée à partir des renseignements fournis par la DIREN. Par contre, celle des autres villes est une même valeur issue de la SFSP (1999). La teneur en air dans le sol superficiel est renseignée d'après les données de l'INERIS pour le cas étudié et par la chambre d'agriculture du Maine-et-Loire (donc pour Angers). La température est, rappelons-le, déterminée par Météo France. Quant à la différence d'épaisseur de zone vadose, il n'y a pas de valeur spécifique au cas étudié et celles trouvées pour les autres villes n'ont pas de source citée.

On retiendra que les plantes qui poussent sur les sables et les terreaux sableux contiennent plus d'arsenic total que les plantes qui poussent sur d'autres sols [40]. En effet, l'arsenic est davantage sujet à translocation dans les sols sableux [26].

Finalement, les intervalles de valeurs existantes sont généralement faibles, ce qui pourrait expliquer qu'une modification cas par cas de la valeur des paramètres n'ait pas eu d'impact significatif sur le résultat.

- **Les paramètres relatifs à la flore**

Lorsque la pollution est d'origine atmosphérique, l'exposition des cibles est principalement liée à la contamination de l'air et du sol superficiel. Il faudrait donc accorder plus d'importance au renseignement des paramètres reliés aux feuilles des plantes, les racines et la tige étant davantage relatives aux transferts sol - plante par l'intermédiaire du phloème et du xylème [24].

Mais l'absence des paramètres concernant la physiologie des végétaux parmi les paramètres influençant le résultat permet d'utiliser des valeurs numériques représentatives d'un couvert végétal « moyen » pour renseigner le logiciel. Dans ce travail, le fait de ne pas connaître avec précision les espèces végétales présentes sur le terrain d'étude par exemple ne devait pas induire d'incertitude supplémentaire.

Cependant, les teneurs en arsenic paraissant plus importantes dans les racines que dans les tiges et les feuilles [3], ne serait-il pas pertinent de renseigner précisément les paramètres relatifs aux racines ?

Parmi les plantes entrant dans l'alimentation humaine, les laitues présentent la plus forte capacité d'accumulation de l'arsenic [3]. Dans le cadre d'un scénario majorant, il serait alors judicieux de renseigner les paramètres relatifs à la flore en prenant en compte la laitue.

- **Les paramètres relatifs au poisson et à sa consommation par la cible**

Le poisson est l'aliment qui renferme le plus d'arsenic [15]. Dabeka *et al.* (1993) a analysé différents aliments. Il en ressort que le poisson et les autres produits de la mer étudiés contiennent en moyenne 1662 µg d'arsenic / kg (poids humide) avec un intervalle de valeurs de 77 à 4830 µg As / kg. C'est près de 70 fois plus que la quantité d'arsenic dans les viandes, plus de 400 fois celle dans les produits laitiers et près de 240 fois celle dans les légumes. Mais remarquons que l'arsenic présent dans le poisson est majoritairement de l'arsenic organique donc non toxique [15]. L'étude de l'alimentation totale française réalisée [2] montre que l'arsenic est retrouvé présent à un niveau 40 fois supérieur dans les poissons, mollusques et crustacés par rapport aux autres groupes d'aliments. Aussi, les produits de la mer sont les vecteurs qui contribuent le plus à l'exposition de la population à hauteur de 72 à 80% (poissons seuls : 49 à 50%). Les autres vecteurs contribuent à des niveaux inférieurs à 5% de l'exposition alimentaire totale. Sur ce point, les résultats de CalTOX montrent que l'ingestion de poissons est particulièrement responsable de l'exposition à l'arsenic. Le renseignement du paramètre '*lfsh*' avec une valeur représentative de la cible étudiée est donc important.

- **Prise en compte de la pollution par rejet atmosphérique**

Le fait d'avoir obtenu des concentrations en polluant inversement proportionnels à la surface du terrain vient du fait que l'hypothèse de considérer un flux de rejet dans l'atmosphère (en mol/j) ne soit pas recommandée. Il vaut mieux faire tourner le logiciel avec une concentration en polluant dans l'atmosphère (en mol/m³) déterminée préalablement par un logiciel de dispersion atmosphérique, surtout qu'ici, l'air est le milieu de rejet initial.

4.5 Facilité de renseignement des paramètres

4.5.1 Sources d'information sur les habitudes de consommation

- **Consommation de viandes**

Le CIV (Centre d'Information des Viandes), peut être une bonne source d'information sur la consommation de viande bovine des Français [41].

- **Consommation de produits de la mer**

On a vu précédemment que la part d'exposition à l'arsenic via la consommation de produits marins n'était pas négligeable.

La comparaison de deux enquêtes nationales de consommation alimentaire auprès des adolescents et des adultes réalisée par l'AFSSA (Agence Française de sécurité sanitaire des Aliments) montre que la consommation de poissons augmente avec l'âge [42]. Ce peut être un élément à prendre en compte par l'évaluateur de risque pour le renseignement du paramètre '*fish*'.

Par ailleurs, pour avoir une idée de l'ampleur de la consommation de poissons par la cible, l'évaluateur peut se référer au nombre de cartes de pêche émises dans le secteur étudié [18].

- **Consommation de lait**

Le CNIEL (Centre National Interprofessionnel de l'Économie Laitière) et le CIDIL (Centre Interprofessionnel de Documentation et d'Information Laitières) renseignent sur l'économie laitière. Une publication du Service Études du CIDIL indique qu'en 2002, quatre régions françaises sont « sur-consommatrices » de lait (liquide) : le Nord, l'Ouest et les deux régions Centre. Une région est considérée comme « sous-consommatrice », il s'agit de la région parisienne, tandis que les régions Est et Sud sont proches ou égales à la moyenne nationale. De plus, depuis les années 1999 (date de réalisation de la dernière étude INCA), le CIDIL note une diminution de la consommation de lait [43].

Ces observations peuvent permettre d'apprécier le caractère majorant ou minorant de la valeur retenue pour caractériser la quantité de lait ingérée par la cible, sous CalTOX.

- **Parts d'autoconsommation**

L'importance des paramètres caractérisant les parts d'autoconsommation amène l'évaluateur de risques à utiliser des données les plus représentatives, récentes et fiables possibles sur les habitudes de consommation de la population de la zone d'étude. Ainsi, des enquêtes alimentaires auprès des personnes concernées seraient les bienvenues. Un sondage pourrait être réalisé auprès de la population.

4.5.2 Accessibilité des autres paramètres et recommandations

Plusieurs paramètres peu communément utilisés pour une évaluation des risques par ingestion réalisée sans outil de modélisation sont apparus comme étant sources de variabilité de résultat. Dès lors, cette constatation demande un effort d'acquisition de valeurs plausibles et adaptées au contexte de l'exposition étudiée.

Le travail de recherche de données chiffrées montre que de nombreuses valeurs sont spécifiques à une situation rencontrée (lien avec le climat et la géologie du site par exemple). Il faudrait donc faire des mesures analytiques représentatives – donc un certain

nombre – sur le site ou au moins rechercher dans la littérature les valeurs qui ont été obtenues dans des conditions similaires ou très proches de la situation étudiée, pour diminuer l'incertitude entourant les paramètres. Par exemple, pour connaître les phénomènes de dégradation d'une substance au cours du temps, il est possible de faire des essais de biodégradation dans les conditions du site [1].

La recherche de données par la voie de la littérature scientifique doit être rigoureuse afin de vérifier l'absence de données contradictoires.

Les données représentatives de la France et de ses régions sont limitées. Les organismes comme les chambres d'agriculture, les DIREN, les DRIRE et les agences de l'eau ont l'avantage d'être présentes dans les régions donc au plus près des sites étudiés et de pouvoir être contactés facilement mais il est moins évident de trouver des informations car la modélisation par CalTOX demande des données, une nouvelle fois, peu fréquemment utilisées donc méconnues.

4.6 Généralisation et validation de l'outil

Les variations de résultats observées dans ce mémoire n'ont pas un caractère généralisable. En effet, en fonction des substances et des scénarii envisagés, il se peut que les variations observées et l'impact des paramètres ne soient pas les mêmes. De plus, les paramètres influents peuvent être différents et le choix de la méthode d'analyse de sensibilité utilisée peut expliquer la sensibilité ou non du modèle à des paramètres.

4.6.1 Extrapolation à d'autres métaux

Une fonderie de métaux ferreux rejette à l'atmosphère d'autres polluants aux effets cancérigènes et/ou systémiques. Il s'agit entre autres du cadmium et du plomb.

La question est de savoir si CalTOX 4.0 peut être utilisé pour étudier les expositions par ingestion de ces substances. En fait, la réponse pourrait être apportée après avoir mené une démarche similaire à celle faite pour le cas de l'arsenic. Pour tout métal, il s'agit de connaître dans un premier temps le comportement de ces polluants dans l'environnement (sont-ils persistant dans l'environnement ? Quels milieux sont contaminés ? Sont-ils solubles ?...). Ensuite, ces substances sont-elles susceptibles de provoquer des risques par ingestion non négligeables par rapport au risque par inhalation par exemple ? Par ailleurs, dispose t-on de VTR ?

En ce qui concerne les paramètres à renseigner avec précision, on ne sait pas quels seront ceux qui pèseront le plus lourd pour telle ou telle substance. Les paramètres sensibles trouvés pour l'arsenic ne sont pas forcément les mêmes pour le cadmium ou pour le plomb. Il faudrait par conséquent effectuer une étape de recherche des paramètres les plus pesants. Cette recherche pourrait mettre en évidence des paramètres sensibles communs à plusieurs métaux ou au contraire des paramètres sensibles spécifiques à un métal auxquels il faudrait alors porter particulièrement attention.

Néanmoins, on peut penser que les coefficients de partition et de biotransformation seront aussi des paramètres influents sur le résultat. Dès lors, les mêmes problèmes liés à leur détermination expérimentale puis leur choix pour l'évaluation des risques se poseront.

4.6.2 Utilisation de CalTOX pour différentes cibles humaines

La définition de la cible par défaut sous CalTOX ne correspond pas forcément aux mêmes hypothèses que les évaluateurs de risques français posent. Ainsi, dans CalTOX, le jeu de données '*Residential Exposure Factors*' définit les paramètres pour une cible adulte pesant 62 kg. Il y a aussi la possibilité de considérer une femme adulte de plus de 19 ans pour 65,4 kg ou un homme adulte de plus de 19 ans pesant 78,7 kg. D'autres classes d'âges définissent les nourrissons, les enfants et les adolescents et pour chaque sexe.

Par exemple, les évaluateurs de risque en France ont pour habitude de considérer que l'enfant est un individu âgé de moins de 6 ans et de poids moyen 15 kg. En comparaison avec CalTOX et si l'on se base sur le poids de l'enfant, la classe d'âge la plus proche des enfants de 6 ans pour 15 kg est celle des 1-2-3 ans sous CalTOX. Il y a donc une différence d'appréciation de la cible. Cet exemple montre à nouveau l'intérêt de définir avec soin la cible considérée, notamment du fait que de nombreux paramètres d'exposition sont à définir par rapport au kg de poids corporel de la cible considérée.

4.6.3 Point de vue de l'INERIS sur l'utilisation de CalTOX

Le Ministère de l'Écologie et du Développement Durable anime des groupes de travail (dont fait partie l'INERIS) chargés de rédiger des guides sur la réalisation d'études d'évaluations des risques sanitaires de différentes activités industrielles.

L'INERIS [23], au sujet de l'utilisation la version 4.0 de CalTOX, pense que bien que l'utilisation de la version 4.0 soit motivée par le fait que c'est la version la plus récente, correspondant à l'état des connaissances actuel, il y a un problème de transparence du fait de l'absence de support technique où seraient explicités les processus modélisés, et les hypothèses retenues. De plus, il s'agit d'une version toujours en cours de développement, donc non finalisée. L'INERIS pense qu'il peut y avoir des erreurs dans les algorithmes mathématiques et propose que des investigations concernant le logiciel continuent à être menées, avant de l'employer dans le cadre d'études, pour éclaircir les problèmes mis en évidence et éviter une mauvaise utilisation.

4.6.4 Validation de l'outil

Une « validation » de l'outil informatique serait nécessaire dans le sens où il faudrait confirmer les résultats obtenus, tout du moins, évaluer le degré d'approximation des résultats théoriques obtenus avec des valeurs expérimentales. Cela peut être réalisé en confrontant le modèle à la réalité avec une comparaison des résultats fournis par le modèle avec soit des mesures numériques et directes sur le terrain (mesure des DE absorbées par les individus), ce qui certes paraît souvent économiquement ou techniquement difficilement réalisable, soit par une comparaison de résultats qualitatifs avec les mesures expérimentales correspondantes, soit encore par retour d'expérience.

Il reste à savoir si pour une évaluation de risques sanitaires dans un dossier de demande d'autorisation d'exploitation pour une ICPE il est nécessaire ou pas d'attendre la validation officielle du logiciel pour l'utiliser.

CONCLUSION

Le logiciel CalTOX 4.0 peut être utilisé pour évaluer les expositions liées à l'ingestion de métaux dans la mesure où les critères de compatibilité d'utilisation sont satisfaits.

Le temps nécessaire pour faire tourner le logiciel est court. Outil de calcul « tout fait », CalTOX 4.0 présente le désavantage de manquer quelque peu de transparence et de présenter une certaine complexité dans la mesure où un utilisateur non initié pourrait avoir du mal à savoir réellement ce qui est pris en compte pour les calculs réalisés par le modèle. Mais la complexité du modèle tient surtout du fait que pour modéliser l'exposition il faut renseigner un grand nombre de données d'entrée. Pour évaluer les concentrations de la substance polluante dans les milieux d'exposition, l'évaluateur a besoin de connaître les caractéristiques physico-chimiques de la substance et les caractéristiques du site impacté. L'estimation des doses ingérées par la cible nécessite de définir convenablement les paramètres d'exposition. Or l'utilisation de CalTOX ne sera justifiée que si les paramètres d'entrée sont renseignés avec suffisamment de précision.

Le travail effectué dans ce mémoire met en évidence le peu de données françaises disponibles. Des investigations supplémentaires sont nécessaires pour obtenir une qualité et une quantité de données appropriées.

Bien qu'il y ait des valeurs par défaut proposées, il faut veiller à la validité de celles-ci pour le cas traité. Il convient, pour les valeurs des différents paramètres pris en considération, de bien les définir et de préciser s'il s'agit de valeurs mesurées sur le site ou de valeurs bibliographiques, voire même d'une éventuelle utilisation de paramètres par défaut proposés dans tel ou tel autre modèle commercialisé. En effet, on a souvent recours à l'utilisation simultanée de valeurs expérimentales et de valeurs calculées dont le mode d'obtention n'est pas toujours précisé dans les ressources littéraires.

Il est aussi important de consulter plusieurs bases de données et références bibliographiques pour s'assurer d'une meilleure adaptation des données au cas français. Compte tenu de l'étendue des valeurs trouvées, une approche majorante du risque peut être recommandée. Aussi, on ne peut que préconiser l'utilisation de données spécifiques au site.

Les résultats de l'analyse de sensibilité semblent être propres à un polluant particulier. On observera probablement des différences entre le cas de l'arsenic et un autre métal.

Les différences de résultats sont dues à un ensemble d'hypothèses prises en compte soit par le logiciel (modes de transferts du polluant dans les différents milieux, écriture des équations, simplifications), soit par l'utilisateur du logiciel (prise en compte ou non de phénomènes physico-chimiques ou biologiques, valeur des paramètres...)

Enfin, dans ce mémoire, on s'est limité à une approche de sensibilité déterministe. Utiliser une méthode d'analyse probabiliste - où seraient prises en compte des distributions de valeurs plutôt que des valeurs ponctuelles - serait alors une bonne méthode complémentaire à l'analyse déterministe même si cela entraîne un coup financier pour un bureau d'études puisqu'il faut alors acquérir un logiciel.

L'évaluation des risques sanitaires étant à la charge du propriétaire de l'entreprise, sa réalisation est fonction des délais et coûts qu'on lui accorde. Un équilibre est à trouver entre le choix et le degré de précision des investigations menées afin d'acquérir les informations nécessaires à la bonne mise en œuvre de l'étude.

Bibliographie

- [1] BRGM. *Guide méthodologique de l'arsenic appliqué à la gestion des sites et sols pollués*. Editions BRGM. 2003. 91 p.
- [2] DGAL-INRA. LEBLANC J.C. (coordonnateur) *Etude de l'alimentation totale française. Mycotoxines, minéraux et éléments traces*. [en ligne]. Mai 2004 [visité le 2 août 2004]. Disponible sur Internet : < <http://www.inra.fr/presse/COMMUNIQUES/doc-comm118.pdf>>
- [3] INERIS. *Arsenic et ses dérivés inorganiques* [en ligne]. Novembre 2003. [visité le 8 juin 2004]. Disponible sur Internet : < http://www.ineris.fr/recherches/download/arsenic_2.pdf>
- [4] HENRY M. (coordinateur) *Autour de la modélisation en probabilités*. Paris : PUFC, 2001. 258 p. Collection Didactiques.
- [5] INERIS. *Evaluation de l'impact sur la santé des rejets atmosphériques des tranches de charbon d'une Grande Installation de Combustion (GIC), Partie 2 : exposition par voies indirectes* [en ligne]. Juin 2003 [visité le 6 mai 2004]. Disponible sur Internet : < http://www.ineris.fr/recherches/eis_2.htm>
- [6] McKONE T.E., ENOCH K.G. *CalTOX, A Multimedia Total-Exposure Model Spreadsheet User's Guide, Version 4.0 (Beta)*. Ernest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory, 2002. 37p.
- [7] Site Internet : <<http://www.eetd.lbl.gov/ied/era>>
- [8] DTSC. *The distribution of California landscape variables for CalTOX*. California, 1996. 28p.
- [9] PILLEBOUT A. *CalTOX pour l'estimation des expositions liées aux rejets d'une grande installation de combustion*. Mémoire pour le diplôme d'Ingénieur du Génie Sanitaire : ENSP, Rennes, 2003. 84p.
- [10] DTSC. *CalTOX, a Multimedia Total-Exposure Model for Hazardous-Wastes Sites Part I: Executive Summary*. California, 1993. 34p.
- [11] DTSC. *CalTOX, a Multimedia Total-Exposure Model for Hazardous-Wastes Sites Part II: The Dynamic Multimedia Transport and Transformation Model*. California, 1993. 103p.
- [12] DTSC. *CalTOX, a Multimedia Total-Exposure Model for Hazardous-Wastes Sites Part III: the Multiple-Pathway Exposure Model*. California, 1993. 91p.
- [13] DTSC. *CalTOX, a Multimedia Total-Exposure Model for Hazardous-Wastes Sites Part IV: Comments and responses*. California, 1993. 105p.
- [14] INERIS. *Méthode de calcul des Valeurs de Constat d'Impact dans les sols* [en ligne]. Novembre 2001. [visité le 18 mai 2004]. Disponible sur Internet : < http://www.ineris.fr/recherches/som_rapport.htm>
- [15] IPCS. *Environmental Health Criteria 224, Arsenic and arsenic compounds*. WHO. Genève. 2001.

- [16] US-EPA. *TRIM.FaTE Reference Library Values Background Document*. Avril 2004. [en ligne]. [visité le 25 mai 2004].
Disponible sur Internet: <<http://www.epa.gov>>
- [17] AFSSA. *Enquête individuelle et nationale sur les consommations alimentaires (enquête INCA 1999)*. [en ligne]. [visité le 17 mai 2004].
Disponible sur Internet : <<http://www.afssa.fr>>
- [18] INERIS. *Evaluation des risques sanitaires liés aux substances chimiques dans les études d'impact des ICPE*. 2003.
- [19] DENEUX-MUSTIN S., ROUSSEL-DEBET S., MUSTIN C., et al. *Mobilité et transfert racinaire des éléments en traces : influence des micro-organismes du sol*. Paris: Editions Tec & Doc, 2003. 282p.
- [20] ATSDR. *Toxicological Profile for Arsenic* [en ligne]. Atlanta, 2000. [visité le 2 août 2004].
Disponible sur Internet:< <http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp2.html>>
- [21] Human Health Risk Assessment Protocol for Hazardous Waste Combustion Facilities, Peer Review Draft [en ligne]. [visité le 2 juin 2004].
Disponible sur Internet: <<http://www.epa.gov/epaoswer/hazwaste/combust/risk.htm>>
- [22] TRAPP S. Plant uptake and transport models for neutral and ionic chemicals. *Environ Sci & Pollut Res* [en ligne], Août 2003 [visité le 8 juin 2004].
Disponible sur Internet : <http://www.er.dtu.dk/homepages/stt/ESPR_Trapp.pdf>
- [23] BONNARD R. *Etude d'intercomparaison de modèles multimédia d'exposition* [en ligne]. INERIS, décembre 2003.
Disponible sur Internet : < http://www.ineris.fr/recherches/som_rapport.htm>
- [24] CHARBONNEL J. *Contribution de l'atmosphère à l'exposition aux pesticides par la consommation de produits de jardin*. Mémoire pour le diplôme d'Ingénieur du Génie Sanitaire : ENSP, Rennes, 2003. 83p.
- [25] CAMREDON M. *Développement d'un module thermodynamique pour la formation des aérosols organiques secondaires*. Diplôme d'Etudes Approfondies : Universités Paris 7, Paris 12, Paris 6, Chambéry et Grenoble, 2003. 50p.
- [26] Alam M.G., Snow E.T., Tanaka A. Arsenic and heavy metal contamination of vegetables grown in Samta Village, Bangladesh. *The Science of the total Environment*, Août 2003, vol. 41, n°8, pp. 1103-1110.
- [27] Site Internet : <<http://www.melounou.com/~memoire/eau/hydrogeologie.htm>>
- [28] MIQUEL G., REVOL H. *La qualité de l'eau et de l'assainissement en France, Annexe 12 : les mécanismes de transfert des polluants dans les eaux souterraines* [en ligne]. 2002-2003. [visité le 15 juillet 2004].
Disponible sur Internet : <<http://www.senat.fr/rap/102-215-2/102-215-211.html>>
- [29] LE BISSONNAIS Y., THORETTE J., BARDET C. et al. *L'érosion hydrique des sols en France* [en ligne]. IFEN-INRA, 2002 [visité le 30 juillet 2004].
Disponible sur Internet : <http://erosion.orsay.fr/rapport_2002>
- [30] CALVET R. *Le sol, propriétés et fonctions, tome 1 : constitution et structure, phénomènes aux interfaces*. Paris : Editions France Agricole, Dunod, 2003. 456 p.

- [31] TRAPP S. Dynamic root uptake model for neutral lipophilic organics. *Environmental Toxicology and Chemistry*. 2002, vol. 21, n°1, pp. 203-206.
- [32] INERIS. *Evaluation détaillée des risques pour la santé. Fiches techniques de présentation des modèles d'exposition aux sols pollués. HESP* [en ligne]. Octobre 2002. [visité le 18 mai 2004].
Disponible sur Internet : <http://www.ineris.fr/recherches/download/drc_hesp1.pdf>
- [33] JAIN C. K., ALI I. Arsenic: occurrence, toxicity and speciation techniques. *Water Research*, Février 2000, vol. 34, n°. 17, pp. 4304-4312.
- [34] INSEE PREMIERE. *Les Français privilégient toujours les vacances à la mer*. Décembre 2001, n°819.
- [35] BONNARD R. *Les modèles multimédia pour l'évaluation des expositions liées aux émissions atmosphériques des installations classées* [en ligne]. INERIS, décembre 2001.
Disponible sur Internet :
<http://www.sante.gouv.fr/htm/dossiers/etud_impact/multi_ei72.pdf>
- [36] DANY C.M. *De l'eau en quantité et en qualité pour les bovins laitiers* [en ligne]. Décembre 2003.
Disponible sur Internet : <<http://www.agrireseau.qc.ca/bovinslaitiers>>
- [37] NASREDDINE L., PARENT-MASSIN D. Food contamination by metals and pesticides in the European Union. Should we worry?. *Toxicology Letters*. Février 2002, vol. 127, n°1-3, pp. 29-41.
- [38] BONNARD R. Origines des différences de résultats fournis par un modèle multimédia simple et le modèle CALTOX : cas de l'estimation des risques par ingestion liés aux émissions de dioxines des grandes installations de combustion. *Environnement, Risques & Santé*, Septembre - Octobre 2003, vol. 2, n°5, pp. 284-290.
- [39] WOLZ S., FENSKE R.A., SIMCOX N.J. et al. Residential arsenic and lead levels in an agricultural community with a history of lead arsenate use. *Environmental Research*. Février 2002, vol. 96, n° 3, pp. 293-300.
- [40] HERTWICH E.G., McKONE T.E., PEASE W.S. A systematic uncertainty analysis of an evaluative fate and exposure model. *Risk analysis*, 2000, vol. 20, n°4, pp. 437-452.
- [41] Site Internet : <<http://www.civ-viande.org>>
- [42] AFSSA. *Comparaison de deux enquêtes nationale de consommation alimentaire auprès des adolescents et des adultes - Baromètre santé nutrition (200) et INCA (1998-1999): éléments de méthode et résultats*. [en ligne]. Juin 2004 [visité le 28 juillet 2004].
Disponible sur Internet : <<http://www.afssa.fr>>
- [43] Site Internet : <<http://www.cidil.fr>>

Liste des annexes

- Annexe 1 : Liste des paramètres d'entrée de CalTOX**
- Annexe 2 : Jeu de données utilisé pour le site étudié**
- Annexe 3 : Scénarii utilisés pour l'analyse de sensibilité par le module de sensibilité de CalTOX**
- Annexe 4 : Paramètres localement sensibles pour chaque scénario testé avec le module de sensibilité de CalTOX**
- Annexe 5 : Minima et maxima utilisés pour les calculs de l'indice de sensibilité**
- Annexe 6 : Valeurs des « paramètres du sol » pour différents contextes géographiques**
- Annexe 7 : Résultats des simulations effectuées avec divers sols**
- Annexe 8 : Impact de la modification de l'épaisseur du sol superficiel sur la contribution de l'environnement sur la contamination des milieux d'exposition**
- Annexe 9 : Résultats de la modification de la valeur de 'inflow'**
- Annexe 10 : Equations pour le calcul des quantités ingérées sous CalTOX**

ANNEXE 1 : Liste des paramètres d'entrée de CalTOX

- Paramètres physico-chimiques de la substance

Abréviation	Unité	Dénomination sous CalTOX	Traduction française
MW	g/mol	molecular weight	masse molaire
Kow	-	octanol-water partition coefficient	coefficient de partition octanol-eau
Tm	K	melting point	température de fusion
Vp	Pa	vapor pressure	pression de vapeur
S	mol/m ³	solubility	solubilité
H	Pa.m ³ /mol	Henry's law constant	constante de Henry
Dair	m ² /j	diffusion coefficient in pure air	coefficient de diffusion dans l'air pur
Dwater	m ² /j	diffusion coefficient in pure water	coefficient de diffusion dans l'eau pure
Koc	-	organic carbon partition coefficient	coefficient de partition carbone organique-eau
Koa	-	octanol/air partition coefficient	coefficient de partition octanol-air
Kd_s	-	partition coefficient in ground/root soil layer	coefficient de partition dans la zone de sol racinaire
Kd_v	-	partition coefficient in vadose-zone soil layer	coefficient de partition dans la zone vadose
Kd_q	-	partition coefficient in aquifer layer	coefficient de partition dans la zone aquifère
Kd_d	-	partition coefficient in surface water sediments	coefficient de partition dans les sédiments des eaux de surface
Kl_phl	-	leaves/phloems water partition coefficient	coefficient de partition feuilles/phloème
Kl_x	-	stem/xylem-fluid partition coefficient	coefficient de partition tiges/xylème
TSCF	-	transpiration stream concentration factor	facteur de concentration du flux de transpiration
Kpa	m ³ /kg	biotransfer factor plant-air	facteur de biotransformation plante/air
Bk	j/kg	biotransfer factor cattle-diet/milk	facteur de biotransformation alimentation bovine/lait
Bt	j/L	biotransfer factor cattle-diet/meat	facteur de biotransformation alimentation bovine/viande
Be	j/kg	biotransfer factor hen-diet/eggs	facteur de biotransformation alimentation de la volaille/œufs
Bbmk	-	biotransfer factor breast milk/mother intake	facteur de biotransformation lait maternel/ingestion de la mère
BCF	-	bioconcentration factor fish/water	facteur de biotransformation poisson/eau
Psr_rain		particle scavenging ratio of rain drops	ratio de balayage des gouttes de pluie
Kp_w	cm/h	skin permeability coefficient	coefficient de perméabilité de la peau

Km	L/kg	skin-water/soil partition coefficient	coefficient de partition eau de la peau/sol
dfct_sl	-	fraction dermal uptake from soil	fraction prise par l'épiderme à partir du sol
Thalf_a	j	reaction half-life in air	temps de demi-vie dans l'air
Thalf_g	j	reaction half-life in surface soil	temps de demi-vie dans le sol surface
Thalf_s	j	reaction half-life in root-zone soil	temps de demi-vie dans la zone racinaire
Thalf_v	j	reaction half-life in vadose-zone soil	temps de demi-vie dans la zone vadose
Thalf_q	j	reaction half-life in ground water	temps de demi-vie dans l'eau souterraine
Thalf_w	j	reaction half-life in surface water	temps de demi-vie dans l'eau de surface
Thalf_d	j	reaction half-life in sediments	temps de demi-vie dans les sédiments
Thalf_ls	j	reaction half-life in the leaf surface	temps de demi-vie à la surface des feuilles

- Paramètres du site

Abréviation	Unité	Dénomination sous CalTOX	Traduction française
area	m ²	contaminated area	surface du site contaminé
rain	m/j	annual average precipitation	précipitation moyenne annuelle
inflow	m/j	flux surface water into landscape	flux d'apport d'eau sur le site
runoff	m/j	land surface runoff	vitesse de ruissellement
rhob_a	kg/m ³	atmospheric dust load	charge en poussières dans l'atmosphère
v_d	m/j	dry deposition velocity air particles	vitesse de déposition des particules dans l'air
foc_ap	-	aerosol organic fraction	fraction organique des aérosols
beta_leaf	-	volume fraction of water in leaf	fraction d'eau dans la feuille
alpha_leaf	-	volume fraction of air in leaf	fraction d'air dans la feuille
lipid_leaf	-	volume fraction of lipid in leaf	fraction de lipide dans la feuille
beta_stem	-	volume fraction of water in stem	fraction d'eau dans la tige
beta_root	-	volume fraction of water in root	fraction d'eau dans les racines
veg_prod	kg/m ² .an	primary production dry vegetation	production végétale journalière
LAI	-	one-sided leaf area index	indice de surface foliaire, une seule face
IF_w	-	wet interception fraction	fraction d'interception
d_cuticule	m	average thickness of leaf surface	épaisseur moyenne de la cuticule
rho_stem	kg/m ³	stem wet density	masse volumique de la tige fraîche
rho_leaf	kg/m ³	leaf wet density	masse volumique de la feuille fraîche
rho_root	kg/m ³	root wet density	masse volumique des racines fraîches
atf_leaf	m ³ /kg	vegetation attenuation factor dry interception	facteur d'atténuation végétale
na_st	-	stomata area fraction	fraction de la surface des stomates par rapport à la surface de la feuille
del_st	-	effective pore depth	épaisseur effective des pores
del_a	-	boundary layer thickness over leafs	épaisseur de la couche limite sur les feuilles
Thalf_le	j	leaf surface erosion half-life	temps de demi-vie érosion de la surface de la feuille
recharge	m/j	ground-water recharge	recharge des eaux souterraines
evaporate	m/j	evaporation of water from surface water	évaporation de l'eau de surface
d_g	m	thickness of the ground soil layer	épaisseur de la couche de sol superficielle
rhos_s	kg/m ³	soil particle density	densité des particules du sol
beta_g	vol fraction	water content in the surface soil	fraction volumique de l'eau contenue dans les couche de sol superficiel
alpha_g	vol fraction	air content in the surface soil	fraction volumique de l'air contenu dans la couche de sol superficiel
erosion_g	kg/m ² .j	erosion of the surface soil	érosion de la couche de sol superficiel
D_bio	m ² /j	bioturbation	bioturbation

d_s	m	thickness of the root-zone soil	épaisseur de la couche de sol racinaire
beta_s	vol fraction	water content of the root-zone soil	fraction volumique de l'eau contenue dans la couche de sol racinaire
alpha_s	vol fraction	air content of the root-zone soil	fraction volumique de l'air contenu dans la couche de sol racinaire
d_v	m	thickness of the vadose-zone soil	épaisseur de la zone de sol vadose
beta_v	vol fraction	water content in the vadose-zone soil	fraction volumique de l'eau contenue dans la zone vadose
alpha_v	vol fraction	air content of the vadose-zone soil	fraction volumique de l'air contenu dans la zone vadose
d_q	m	thickness of the aquifer layer	épaisseur de l'aquifère
rhos_q	kg/m ³	solid material density in aquifer	densité des matériaux solides de l'aquifère
beta_q	-	porosity of the aquifer zone	porosité de l'aquifère
f_arw	-	fraction of land area in surface water	fraction du site recouvert par de l'eau de surface
d_w	m	average depth of surface waters	profondeur moyenne des eaux de surface
rhob_w	kg/m ³	suspended sediment in surface water	sédiments en suspension dans les eaux de surface
deposit	kg/m ² .j	suspended sediment deposition	vitesse de déposition des sédiments
d_d	m	thickness of the sediment layer	épaisseur de la couche de sédiments
rhos_d	kg/m ³	solid material density in sediment	densité des matériaux solides dans la couche de sédiments
beta_d	-	porosity of the sediment zone	porosité de la zone de sédiments
bury_d	m/j	sediment burial rate	vitesse d'enfouissement des sédiments
Temp	K	ambient environmental temperature	température ambiante
current_w	m/j	surface water current	vitesse du courant pour les eaux de surface
foc_s	-	organic carbon fraction in upper soil zone	fraction de carbone organique dans la couche de sol superficiel
foc_v	-	organic carbon fraction in vadose zone	fraction de carbone organique dans la couche de sol non saturé
foc_q	-	organic carbon fraction in aquifer zone	fraction de carbone organique dans la zone aquifère
foc_d	-	organic carbon fraction in sediments	fraction de carbone organique dans les sédiments
del_ag	m/j	boundary layer thickness in air above soil	épaisseur de l'air au-dessus du sol
v_w	m/j	yearly average wind speed	vitesse annuelle moyenne du vent

- **Paramètres d'exposition humaine**

n.b. : En italique, paramètres n'intervenant pas dans les calculs d'exposition par ingestion

Abréviation	Unité	Dénomination sous CalTOX	Traduction française
BW	kg	body weight	poids corporel
<i>Sab</i>	<i>m²/kg</i>	<i>surface area</i>	<i>surface corporelle</i>
<i>BRa</i>	<i>m³/kg.h</i>	<i>active breathing rate</i>	<i>taux de respiration en période d'activité</i>
<i>BRr</i>	<i>m³/kg.h</i>	<i>resting breathing rate</i>	<i>taux de respiration au repos</i>
lfl	L/kg.j	fluid intake	quantité de liquide ingérée par jour
lfv	kg/kg.j	frut and vegetable intake	quantité de fruits et légumes ingérés par jour
lg	kg/kg.j	grain intake	quantité de céréales ingérées par jour
lmk	kg/kg.j	milk intake	quantité de lait ingérée par jour
lmt	kg/kg.j	meat intake	quantité de viande ingérée par jour
legg	kg/kg.j	egg intake	quantité d'œufs ingérée par jour
lfsh	kg/kg.j	fish intake	quantité de poissons ingérée par jour
lsl	kg/kg.j	soil ingestion	quantité de sol ingérée par jour
lbn	kg/kg.j	breast milk ingestion by infants	quantité de lait maternel ingérée par jour
lnc	m ³ /j	inhalation by cattle	taux de respiration du bétail
lnh	m ³ /j	inhalation by hens	taux de respiration des volailles
lvdc	kg/j	ingestion of pasture by dairy cattle	quantité de pâturage ingérée par le bétail laitier
lvbc	kg/j	ingestion of pasture by beef cattle	quantité de pâturage ingérée par le bétail non laitier
lvh	kg/j	ingestion of pasture by hens	quantité de pâturage ingérée par les volailles
lwdc	L/j	ingestion of water by dairy cattle	quantité d'eau ingérée par le bétail laitier
lwbc	L/j	ingestion of water by beef cattle	quantité d'eau ingérée par le bétail non laitier
lwh	L/j	ingestion of water by hens	quantité d'eau ingérée par les volailles
lsc	kg/j	ingestion of soil by cattle	quantité de sol ingéré par le bétail
ulsh	kg/j	ingestion of soil by hens	quantité de sol ingéré par les volailles
fw_sw	-	fraction of water needs from ground water	fraction d'eau souterraine utilisée
fw_sw	-	fraction of water needs from surface water	fraction d'eau de surface utilisée
R_irr	L/m ² .j	water irrigation rate applied to agricultural soil	fraction de polluants dans les eaux d'irrigation transférées dans le sol
fabv_grd_v	-	fraction of fruits & vegetable that are exposed produced	fraction de fruits et légumes exposés
flocal_v	-	fraction of fruits & vegetable local	fraction de fruits et légumes locaux

flocal_g	-	fraction of grains local	fraction de graines locales
flocal_mk	-	fraction of milk local	fraction de lait local
flocal_mt	-	fraction of meat local	fraction de viandes locales
flocal_egg	-	fraction of eggs local	fraction d'œufs locaux
flocal_fsh	-	fraction of fish local	fraction de poissons locaux
Kpa_part	m ³ /kg	plant-air partition factor particles	répartition air- plante des particules
rainsplash	(mg/kg)/(mg/kg)	rainsplash	fraction d'éclaboussures de sol par les plantes
Wshower	L/min	water use in the shower	quantité d'eau utilisée pour la douche
Whouse	L/h	water use in the house	quantité d'eau utilisée dans l'habitation
Brbath	m ³ /min	room ventilation rate in the bathroom	ventilation de la salle de bains
Vrhouse	m ³ /h	room ventilation rate in the house	ventilation de la maison
Etsb	h/j	exposure time in shower or bath	durée de la douche
Etai	h/j	exposure time active indoors	durée des activités dans la maison
Etao	h/j	exposure time outdoors at home	durée des activités à l'extérieur
Etri	h/j	exposure time indoors resting	durée du temps de repos dans la maison
dust_in	kg/m ³	indoor dust load	quantité de poussières dans la maison
Efsl	j/an	exposure frequency to soil on skin	fréquence d'exposition de la peau au sol
Sisl	mg/cm ²	soil adherence to skin	adhérence du sol à la peau
alpha_inair	-	ration of indoor gas concentration to soil gas concentration	ratio concentration ait intérieur sur air extérieur
Etsw	h/j	exposure time swimming	durée de la baignade
Efsw	j/an	exposure frequency swimming	fréquence des baignades
lsww	L/kg.h	water ingestion while swimming	quantité d'eau ingérée pendant la baignade
ED	an	exposure duration	durée de fonctionnement de l'installation
AT	j	averaging time	nombre de jours d'exposition

Annexe 2 : Jeu de données utilisé pour le site étudié

Paramètre physico-chimique	Valeur utilisée	Paramètre du site	Valeur utilisée	Paramètre d'exposition	Valeur utilisée
MW	74,92	Area	100000	BW	70
Kow	0	rain	0,00227	SAb	0,023
Tm	1090,15	rain_days	0	BRa	0,017
VP	0	inflow	0,073	BRr	0,0057
S	0,1	runoff	0,000227	lfl	0,0285
H -	n/a	rhob_a	1,81E-08	lfv	0,0047
Dair	0,64	v_d	500	lg	0,00351
Dwater	0,000066	foc_ap	0,2	lmk	0,00171
Koc -	0	beta_leaf	0,5	lmt	0,00193
Koa -	n/a	alpha_leaf	0,18	legg	0,00032
Kd_s -	1300	lipid_leaf	0,002	lfsh	0,000421
Kd_v -	1300	beta_stem	0,4	lsl	7,14E-07
Kd_q -	1300	beta_root	0,6	lbn	0,11
Kd_d -	1300	veg_prod	0,9	lnc	122
Kps -	0	LAI -	3,62844652	lnh	2,2
Kl_phl -	0,5	IF_w	0,1	lvdc	60
Ks_x -	0,4	d_cuticle	0,000002	lvbc	80
TSCF -	1	rho_stm	830	lvh	0,2
Kpa -	13700	rho_leaf	820	lwdc	35
Bk -	0,000062	rho_root	800	lwbc	35
Bt -	0,000062	atf_leaf	2,9	lwh	0,084
Be -	0,000062	na_st	0,007	lsc	0,4
Bbmk -	0,03	del_st	0,000025	lsh	0,02
BCF -	75	del_a	0,002	fw_gw	1
Psr_rain -	50000	Thalf_le	14	fw_sw	0
Kp_w -	0,001	recharge	0,0000219	R_irr	2,59
Km -	0,65	evaporate	6,8486E-05	fabv_grd_v	0,85
dfct_sl-	0,201	d_g	0,01	flocal_v	0,4
Thalf_a	n/a	rhos_s	2600	flocal_g	0,4
Thalf_g	n/a	beta_g	0,2	flocal_mk	0,4
Thalf_s	n/a	alpha_g	0,4	flocal_mt	0,4
Thalf_v	n/a	erosion_g	0,00020334	flocal_egg	0,4
Thalf_q	n/a	D_bio	0,00012	flocal_fsh	0,4
Thalf_w	n/a	d_s	0,58	Kpa_part	3300
Thalf_d	n/a	beta_s	0,2	rainsplash	0,0034
Thalf_ls	n/a	alpha_s	0,4	Wshower	16
		d_v	0,55711427	Whouse	583
		beta_v	0,20230106	VRbath	1
		alpha_v	0,23573608	VRhouse	750
		d_q	3	ETsb	0,083
		rhos_q	2600	ETai	6
		beta_q	0,2	ETao	3
		f_arw	0,0182249	ETri	7
		d_w	5	dust_in	0,00000003
		rhob_w	0,8	EFsl	350,6
		deposit	10,5	Slsk	0,5
		d_d	0,05	alpha_inair	0,0001
		rhos_d	2600	ETsw	0,33
		beta_d	0,2	EFsw	13,2
		bury_d	0,000001	lsww	0,000433
		Temp	284	ED	30
		current_w	0	AT	25600
		foc_s	0,03960739		
		foc_v	0,03		
		foc_q	0,00305766		
		foc_d	0,02		
		del_ag	0,005		
		v_w	268000		

Annexe 3 : Scénarii utilisés pour l'analyse de sensibilité par le module de sensibilité de CalTOX

- « **CalTOX** » : tous les paramètres du logiciel : 'Arsenic'
 - 'Calif. Residential Site (CARes)'
 - '(Residential) Exposure Factors'

- « **site étudié** » : paramètres définissant les hypothèses relatives au site étudié :
 - 'Arsenic France'
 - 'Paysage site'
 - 'Exposition France'

- « **sol sableux** » :
 - 'Arsenic France'
 - 'CA Res (clay soil)'
 - 'Exposition France'

- « **sol argileux** » :
 - 'Arsenic France'
 - 'CA Res (sandy soil)'
 - 'Exposition France'

- « **cas A** » :
 - 'Arsenic France'
 - 'Calif. Residential Site (CARes)'
 - 'Exposition France'

- « **cas B** » :
 - 'Arsenic France'
 - 'Calif. Residential Site (CARes)'
 - '(Residential) Exposure Factors'

- « **cas C** » :
 - 'Arsenic'
 - 'Calif. Residential Site (CARes)'
 - 'Exposition France'

- « **cas D** » :
 - 'Arsenic'
 - 'Paysage site'
 - 'Exposition France'

- « **cas E** » :
 - 'Arsenic'
 - 'Paysage site'
 - '(Residential) Exposure Factors'

Annexe 4 : Paramètres localement sensibles pour chaque scénario testé avec le module de sensibilité de CalTOX

CaLTOX	Site étudié	sol sableux	sol argileux	Cas A	Cas B	Cas C	Cas D	Cas E
MW	MW	MW	MW	MW	MW	MW	MW	MW
Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -	Kd_s -
Kd_d -	Kd_d -	Kd_d -	Kd_d -	Kd_d -	Kd_d -	Kd_d -	Kd_v - Kd_d -	Kd_v - Kd_d -
Ks_x -					Ks_x -	Ks_x -	Ks_x -	Ks_x -
TSCF -					TSCF -	TSCF -	TSCF -	TSCF -
Bk -	Kpa -	Kpa -	Kpa -	Kpa -	Bk -	Bk -	Bk -	Bk -
Bt -	Bk -	Bk -	Bk -	Bk -	Bt -	Bt -	Bt -	Bt -
BCF -	Bt -	Bt -	Bt -	Bt -	BCF -	BCF -	BCF -	BCF -
Psr_rain -	BCF -	BCF -	BCF -	BCF -	Psr_rain -	Psr_rain -	Psr_rain -	Psr_rain -
Area	Psr_rain -	Psr_rain -	Psr_rain -	Psr_rain -	Area	Area	Area	Area
rain	Area	Area	Area	Area	rain	rain	rain	rain
	rain	rain	rain	rain			inflow	inflow
	inflow	runoff	runoff				runoff	runoff
rhob_a	rhob_a	rhob_a	rhob_a	rhob_a	rhob_a	rhob_a	rhob_a	rhob_a
v_d	v_d	v_d	v_d	v_d	v_d	v_d	v_d	v_d
beta_leaf						beta_leaf	beta_leaf	beta_leaf
beta_stem						beta_stem	beta_stem	beta_stem
veg_prod	veg_prod	veg_prod	veg_prod	veg_prod	veg_prod	veg_prod	veg_prod	veg_prod
	IF_w	IF_w	IF_w	IF_w	IF_w	IF_w	IF_w	IF_w
rho_stm					rho_stm	rho_stm	rho_stm	rho_stm
rho_leaf					rho_leaf	rho_leaf	rho_leaf	rho_leaf
atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf	atf_leaf
Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le	Thalf_le
recharge						recharge	recharge	
evaporate			evaporate	evaporate	evaporate	evaporate	evaporate	
d_g						d_g	d_g	d_g
rhos_s	rhos_s	rhos_s	rhos_s	rhos_s	rhos_s	rhos_s	rhos_s	rhos_s
beta_g			beta_g	beta_g	beta_g	beta_g		beta_g
alpha_g			alpha_g	alpha_g	alpha_g	alpha_g		
erosion_g			erosion_g	erosion_g	erosion_g	erosion_g		
D_bio	D_bio	D_bio	D_bio	D_bio	D_bio	D_bio	D_bio	D_bio
d_s	d_s	d_s	d_s	d_s	d_s	d_s	d_s	d_s
beta_s	beta_s	beta_s	beta_s	beta_s	beta_s	beta_s	beta_s	beta_s
alpha_s	alpha_s	alpha_s	alpha_s	alpha_s	alpha_s	alpha_s	beta_v alpha_v	alpha_v
f_arw	f_arw	f_arw	f_arw	f_arw	f_arw	f_arw	f_arw	f_arw
						d_w		
rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w
rhos_d		rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w	rhob_w		
bury_d		rhos_d	rhos_d	rhos_d	rhos_d	rhos_d		
v_w	v_w	bury_d	bury_d	bury_d	bury_d	bury_d		
BW	BW	v_w	v_w	v_w	v_w	v_w	v_w	v_w
lfl	lfl	BW	BW	BW	BW	BW	BW	BW
lfl						lfl		lfl
lfl								lfl
lg	lg					lg	lg	lg
lmk	lmk	lg	lg	lg	lg	lmk	lmk	lmk
lmt	lmt	lmk	lmk	lmt	lmt	lmt	lmt	lmt
legg	legg	lmt	lmt	legg	legg	legg	legg	legg
lsl	lsl	legg	legg	lsl	lsl	lsl	lsl	lsl
lvbc	lvbc	lsl	lsl	lvbc	lvbc	lvbc	lvbc	lvbc
lvh	lvh	lvbc	lvbc	lvh	lvh	lvh	lvh	lvh
fw_sw		lvh	lvh	fw_sw	fw_sw	fw_sw		fw_sw
				R_irr	R_irr			R_irr
fabv_grd_v	fabv_grd_v			fabv_grd_v	fabv_grd_v	fabv_grd_v	fabv_grd_v	fabv_grd_v
focal_v	focal_v	fabv_grd_v	fabv_grd_v	focal_v	focal_v	focal_v	focal_v	focal_v
focal_g	focal_g	focal_v	focal_v	focal_g	focal_g	focal_g	focal_g	focal_g
focal_mk	focal_mk	focal_g	focal_g	focal_mk	focal_mk	focal_mk	focal_mk	focal_mk
focal_mt	focal_mt	focal_mk	focal_mk	focal_mt	focal_mt	focal_mt	focal_mt	focal_mt
		focal_mt	focal_mt			focal_egg		
focal_fsh	focal_fsh	focal_egg	focal_egg	focal_fsh	focal_fsh	focal_fsh	focal_fsh	focal_fsh
rainsplash	rainsplash	focal_fsh	focal_fsh	rainsplash	rainsplash	rainsplash	rainsplash	rainsplash
ETsw	ETsw	rainsplash	rainsplash	ETsw	ETsw	ETsw	ETsw	ETsw
EFsw	EFsw	ETsw	ETsw	EFsw	EFsw	EFsw		EFsw
ED	ED	EFsw	EFsw	ED	ED	ED	ED	ED
AT	AT	ED	ED	AT	AT	AT	AT	AT

ANNEXE 5 : Minima et maxima utilisés pour les calculs de l'indice de sensibilité

Paramètre	Minimum	Maximum
Kd_s	1,8	13000
Kd_v	1,8	13000
Kd_q	1,8	13000
Kd_d	1,8	13000
<i>Kpa</i>	0	54767
<u>Kpa</u>	0,000053	15070
Bk	-	0,006
Bt	-	0,02
BCF	4	1000
area	10000	1000000
<u>rain</u>	0,02	0,0025
inflow	0	-
rhob_a	-	0,000000038
D_bio	0	-
v_d	334	690
<i>f_arw</i>	0,0073	0,0292
<u>v_w</u>	241956	294624
<u>lg</u>	0,0032	0,0039
<u>lmk</u>	0,015	0,019
<u>lmt</u>	0,0017	0,0021
<u>legg</u>	0,003	0,0004
lsi	-	0,00000863
<u>fabv_grd_v</u>	0,765	0,935
<u>flocal_v</u>	0,36	0,44
<u>flocal_q</u>	0,36	0,44
<u>flocal_mk</u>	0,36	0,44
<u>flocal_mt</u>	0,36	0,44
<u>flocal_egg</u>	0,36	0,44
<u>flocal_fsh</u>	0,36	0,44

En **gras** : valeurs issues de la littérature

En *italique* : valeurs calculées avec la méthode utilisant les CV

En souligné : valeurs calculées à plus et moins 10% de la valeur initiale

ANNEXE 6 : Valeurs des « paramètres du sol » pour différents contextes géographiques

variable	unité	CaITOX	site étudié	sol argileux	sol sableux	Angers	Grenoble	Toulouse
area	m ²	4,11E+11	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+06	1,00E+05	1,00E+05	1,00E+05
rain	m/j	1,12E-03	2,27E-03	0,0011	1,00E-03	1,83E-03	1,96E-03	1,98E-03
inflow	m/j	0	0	0	0	0	0	0
runoff	m/j	5,37E-04	2,27E-04	2,75E-04	2,75E-04	1,40E-04	1,40E-04	1,40E-04
rhob_a	kg/m ³	6,15E-08	1,81E-08	6,15E-08	6,15E-08	3,80E-08		3,80E-08
v_d	m/j	5,00E+02	5,00E+02	5,00E+02	5,00E+02			
foc_a	fract	2,00E-01	2,00E-01	2,00E-01	2,00E-01			
recharge	m/j	5,58E-05	2,19E-05	1,20E-04	1,20E-04	5,00E-04	5,00E-04	5,00E-04
evaporate	m/j	6,85E-05	6,85E-05	4,38E-06	4,38E-06			
d_g		1,00E-02	1,00E-02	1,00E-02	1,00E-02			
rhos_s	kg/m ³	2,60E+03	2,60E+03	2,60E+03	2,60E+03	1,15E+03		2,14E+03
beta_g	vol fract	1,92E-01	2,00E-01	3,75E-01	1,80E-01			
alpha_g	vol fract	1,56E-02	3,00E-02	1,25E-01	2,20E-01	5,30E-01		
erosion_g	kg/m ² .j	2,03E-04	2,03E-04	3,00E-04	3,00E-04			
D_bio	m ² /j	1,20E-04	1,20E-04	1,20E-04	1,20E-04			
d_s	m/j	7,85E-01	3,00E-01	2,00E+00	4	6,50E-01	2,00E-01	
beta_s	vol fract	2,06E-01	2,00E-01	3,75E-01	1,80E-01			1,69E-01
alpha_s	vol fract	2,53E-01	5,00E-01	1,25E-01	2,20E-01	5,30E-01		
d_v	m	5,57E-01	5,70E-01	5,00E+00	5	1		3,6
beta_v	vol fract	2,02E-01	2,02E-01	3,75E-01	1,80E-01			1,08E-01
alpha_v	vol fract	2,36E-01	2,36E-01	1,25E-01	2,20E-01			
d_q	m	3	2,20 à 2,87	3,00E+00	3	1,00E-03		1
rhos_q	vol fract	2,60E+03	2,60E+03	2,60E+03	2,60E+03			2,14E+03
beta_q	vol fract	2,00E-01	2,00E-01	2,00E-01	2,00E-01			1,00E-01
f_arw	fract	1,82E-02	1,82E-02	8,15E-03	8,15E-03			
d_w	m	5	5	5,00E+00	5			
rhob_w	kg/m ³	0,8	8,00E-01	8,00E-01	8,00E-01			
deposit	kg/m ² .j	10,5	1,05E+01	1,05E+01	1,05E+01			
d_d	m	0,05	5,00E-02	5,00E-02	5,00E-02			
rhos_d	vol fract	2,60E+03	2,60E+03	2,60E+03	2,60E+03			2,14E+03
beta_d		2,00E-01	2,00E-01	2,00E-01	2,00E-01			
bury_d		1,00E-06	1,00E-06	1,00E-06	1,00E-06			
temp	K	2,89E+02	2,84E+02	2,88E+02	2,88E+02	2,89E+02	2,85E+02	
current_w	m/j	0	0,00E+00	0,00E+00	0			
foc_s	vol fract	0	3,00E-02	2,50E-02	7,50E-03	2,25E-02	1,50E-02	2,50E-02
foc_v	vol fract	1,56E-02	3,00E-02	2,50E-02	7,50E-03	5,00E-03	3,00E-03	3,00E-03
foc_q	vol fract	3,06E-03	3,06E+02	1,00E-02	7,50E-03		1,00E-03	1,00E-03
foc_d		2,00E-02	2,00E-02	2,00E-02	2,00E-02			
del_ag	m	5,00E-03	5,00E-03	5,00E-03	5,00E-03			
v_w	m/j	3,06E-03	2,68E+05	3,40E+05	3,40E+05	2,94E+05		2,00E+05

ANNEXE 7 : Résultats des simulations effectuées avec divers sols

Tableau 1 : Doses d'exposition et principales voies d'exposition par ingestion

	Dose d'exposition par ingestion (mg/kg/j)	Principales voies d'exposition
Site étudié	$1,97.10^{-4}$	53,56% ingestion de poissons 46,27% ingestion de produits exposés 0,06% ingestion de viandes 0,05% ingestion d'eau 0,04% ingestion de lait
Sol argileux	$1,29.10^{-5}$	94,13% ingestion de produits exposés 5,67% ingestion de poissons 0,12% ingestion de viandes 0,08% ingestion de lait
Sol sableux	$1,29.10^{-5}$	94,13% ingestion de produits exposés 5,66% ingestion de poissons 0,12% ingestion de viandes 0,08% ingestion de lait
Angers	$1,81.10^{-4}$	56,48% ingestion de produits exposés 42,99% ingestion de poissons 0,38% ingestion d'eau 0,07% ingestion de viandes 0,05% ingestion d'oeufs
Grenoble	$1,89.10^{-4}$	55,33% ingestion de produits exposés 44,49% ingestion de poissons 0,07% ingestion de viandes 0,05% ingestion de lait 0,04% ingestion d'eau
Toulouse	$2,47.10^{-4}$	54,17% ingestion de produits exposés 45,65% ingestion de poissons 0,07% ingestion de viandes 0,05% ingestion de lait 0,04% ingestion d'eau

Annexe 9 : Impact de la modification de l'épaisseur du sol superficiel sur la contribution de l'environnement sur la contamination des milieux d'exposition

• **'d_s' = 0,30 m**

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	1,73 E-60	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					1,73 E-60	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					1,73 E-10	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,03 E-02	2,43 E-06	2,85 E-06	7,81 E-14	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				1,91 E-08	7,68 E-15	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	2,98 E-08	1,42 E-08	3,76 E-13	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	2,68 E-08	1,06 E-08	3,76 E-13	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,76 E-07	9,17 E-10	3,54 E-11	9,02 E-16	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			3,57 E-04	2,57 E-05		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

• **'d_s' = 0,31 m**

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	1,39 E-58	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					1,39 E-58	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					1,39 E-08	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,03 E-02	4,90 E-06	1,58 E-05	6,09 E-11	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				1,05 E-07	5,99 E-12	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	6,00 E-08	7,82 E-08	3,06 E-11	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	5,39 E-08	5,86 E-08	3,05 E-11	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,76 E-07	1,85 E-09	1,95 E-10	7,34 E-14	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			7,20 E-04	1,42 E-04		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

• **'d_s' = 0,58 m**

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	2,98 E-58	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					2,98 E-58	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					2,98 E-08	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,02 E-02	8,26 E-06	4,24 E-05	1,89 E-07	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				2,83 E-07	1,86 E-08	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	1,01 E-07	2,10 E-07	1,00 E-09	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	9,10 E-08	1,58 E-07	7,67 E-10	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,75 E-07	3,11 E-09	5,26 E-10	2,50 E-12	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			1,21 E-03	3,82 E-04		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

- 'd_s' = 0,96 m

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	2,11 E-58	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					2,11 E-58	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					2,11 E-08	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,03 E-02	9,17 E-06	3,44 E-05	2,98 E-10	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				2,30 E-07	2,92 E-11	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	1,12 E-07	1,71 E-07	4,73 E-11	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	1,01 E-07	1,28 E-07	4,70 E-11	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,75 E-07	3,46 E-09	4,27 E-10	1,14 E-13	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			1,35 E-03	3,11 E-04		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

- 'd_s' = 3,1 m

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	1,92 E-58	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					1,92 E-58	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					1,92 E-08	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,02 E-02	1,24 E-05	4,66 E-05	8,33 E-10	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				3,12 E-07	8,19 E-11	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	1,52 E-07	2,31 E-07	4,58 E-11	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	1,37 E-07	1,74 E-07	4,47 E-11	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,75 E-07	4,69 E-09	5,78 E-10	1,10 E-13	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			1,83 E-03	4,21 E-04		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

- 'd_s' = 9,6m

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	9,93 E-59	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					9,93 E-59	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					9,93 E-09	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,03 E-02	1,25 E-05	3,03 E-05	1,37 E-09	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				2,02 E-07	1,35 E-10	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	1,53 E-07	1,50 E-07	2,83 E-11	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	1,38 E-07	1,13 E-07	2,66 E-11	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,75 E-07	4,71 E-09	3,75 E-10	6,87 E-14	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			1,84 E-03	2,73 E-04		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

- 'd_s' = 30 m

EXPOSURE	Air (gases)	Air (dust)	Ground soil	Root soil	Ground water	Surface water
Indoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	0,00 E+00	3,71 E-59	2,62 E-55
Bathroom air (mg/m ³)					3,71 E-59	2,62 E-55
Outdoor air (mg/m ³)	0,00 E+00	2,21 E-06				
Tap water (mg/L)					3,71 E-09	0,00 E+00
Exposed produce (mg/kg)	0,00 E+00	3,03 E-02	1,18 E-05	1,23 E-05	1,57 E-09	0,00 E+00
Unexposed produce (mg/kg)				8,19 E-08	1,54 E-10	0,00 E+00
Meat (mg/kg)	0,00 E+00	1,50 E-04	1,44 E-07	6,08 E-08	1,58 E-11	0,00 E+00
Milk (mg/kg)	0,00 E+00	1,13 E-04	1,30 E-07	4,56 E-08	1,39 E-11	0,00 E+00
Eggs (mg/kg)	0,00 E+00	3,76 E-07	4,44 E-09	1,52 E-10	3,87 E-14	0,00 E+00
Fish and seafood (mg/kg)						1,96 E-03
Household soil (mg/kg)			1,73 E-03	1,10 E-04		
Swimming water (mg/L)						5,34 E-05

ANNEXE 9 : Résultats de la modification de la valeur de 'inflow'

Tableau 2 : Comparaison des doses d'exposition et principales voies d'exposition par ingestion lors de la modification de la valeur du flux d'apport d'eau sur le site

	Dose d'exposition (mg/kg.j)	Principales voies d'exposition
'inflow' = 0.073 m/j	$9,15 \cdot 10^{-5}$	99,43% ingestion de produits exposés 0,36% ingestion de poissons 0,13% ingestion de viandes 0,08% ingestion de lait
'inflow' = 0 m/j	$1,97 \cdot 10^{-4}$	53,56% ingestion de poissons 46,27% ingestion de produits exposés 0,06% ingestion de viandes 0,05% ingestion d'eau 0,04% ingestion de lait

Tableau 3 : Comparaison des doses d'exposition liés à l'ingestion de poissons et d'eau lors de la modification de la valeur du flux d'apport d'eau sur le site

	Dose d'exposition lié à l'ingestion de poissons (mg/kg.j)	Dose d'exposition liée à l'ingestion d'eau (mg/kg.j)
'inflow' = 0.073 m/j	$3,31 \cdot 10^{-11}$	$1,12 \cdot 10^{-9}$
'inflow' = 0 m/j	$1,05 \cdot 10^{-4}$	$8,87 \cdot 10^{-8}$

Tableau 4 : Comparaison des concentrations de polluant dans le poisson et dans l'eau lors de la modification de la valeur du flux d'apport d'eau sur le site

	Concentration dans le poisson (mg/kg)	Concentration dans l'eau (mg/kg)
'inflow' = 0.073 m/j	$1,96 \cdot 10^{-3}$	$5,34 \cdot 10^{-5}$
'inflow' = 0 m/j	$6,25 \cdot 10^{-1}$	$1,70 \cdot 10^{-2}$

ANNEXE 10 : Equations pour le calcul des quantités ingérées sous CalTOX

Ingestion d'eau durant la baignade = toggle 'dermal and ingestion exposures while swimming' x
 $l_{sw} \times EF_{sw} / 365 \times ET_{sw}$

Ingestion de végétaux exposés = toggle 'ingestion of home-grown exposed produce' x ($f_{local_g} \times$
 $l_g + f_{local_v} \times fabv_grd_v \times l_{fv}$)

Ingestion de végétaux non exposés = toggle 'ingestion of home-grown unexposed produce' x
 $f_{local_v} \times (1 - fabv_grd_v) \times l_{fv}$

Ingestion de viande = toggle 'ingestion of home-grown meat' x $f_{local_mt} \times l_{mt}$

Ingestion de lait = toggle 'ingestion of home-grown milk' x $f_{local_mk} \times l_{mk}$

Ingestion d'œufs = toggle 'ingestion of home-grown eggs' x $f_{local_egg} \times l_{egg}$

Ingestion de poisons et produits de la mer = toggle 'ingestion of locally caught fish' x $l_{fsh} \times$
 f_{local_fsh}