

**INERIS**

INSTITUT NATIONAL DE L'ENVIRONNEMENT INDUSTRIEL ET DES RISQUES

Journées techniques

**ADEME**

Angers 8 et 9 juin 1999

**DIOXINES****Méthodologie pour l'évaluation des  
retombées***Michel NOMINÉ*

*Délégué scientifique - Direction des risques chroniques  
INERIS  
60550 Verneuil-en-Halatte*

## SOMMAIRE

|  |          |
|--|----------|
| <b>I. LA MESURE DES DIOXINES ATMOSPHERIQUES.....</b> | <b>4</b> |
| <b>II. LA MESURE DES DEPOTS.....</b>                 | <b>4</b> |
| A. SURFACES ARTIFICIELLES .....                      | 5        |
| B. LES VEGETAUX DE SIMULATION.....                   | 7        |
| C. LES VEGETAUX NATURELS OU CULTIVES EN PLACE .....  | 7        |
| D. LES SOLS .....                                    | 7        |

## Introduction

Il est maintenant largement démontré que la contamination de l'homme par les dioxines se produit essentiellement par l'intermédiaire de la chaîne alimentaire, soit directement par la consommation de végétaux contenant des traces de dioxines, soit indirectement par la consommation de produits d'origine animale eux-mêmes contaminés par les dioxines contenues dans l'alimentation des animaux. Il est également acquis que les dioxines proviennent en majorité de sources émettant directement dans l'atmosphère et que le vecteur air joue ainsi un rôle prépondérant.

L'évaluation de l'impact d'une source fixe sur son environnement proche doit tenir compte de ce fait et doit suivre une méthodologie qui assure au moindre coût la meilleure pertinence des résultats en termes d'évaluation des risques sanitaires.

Il n'existe actuellement pas de méthode reconnue de ce point de vue, ni au niveau national, ni au niveau international. L'ADEME a mandaté l'INERIS pour étudier les différentes approches proposées dans la littérature ainsi que les pratiques dans certains pays et pour, sur ces bases, proposer une méthodologie adaptée au cas de sources fixes dans trois situations :

- Installation à construire : détermination du point zéro et évaluation de l'impact prévisionnel, préparation d'un programme de suivi après mise en fonctionnement.
- Installation en fonctionnement : évaluation de l'impact réel, bilan avant et après modification.
- Installation arrêtée : pollution historique.

La chaîne de processus qui conduit à la contamination humaine comporte de nombreux éléments et met en jeu plusieurs milieux. La caractérisation de l'impact de la source peut se situer à différents niveaux dans cette chaîne et concerner un ou plusieurs des milieux potentiellement touchés.

## La mesure des retombées

On désigne par "retombées" ou "dépôt" la fraction des dioxines émises à la cheminée qui, après transfert atmosphérique, se retrouvent fixées sur des surfaces solides (parties aériennes des végétaux en particulier, surface des sols nus...). On distingue :

- Un mécanisme de dépôt sec qui concerne aussi bien la fraction gazeuse que la fraction particulaire et qui met en oeuvre des phénomènes de diffusion-captation de nature physique, chimique ou biologique impliquant uniquement les couches d'air les plus proches de la surface concernée par ces dépôts.
- Un mécanisme de dépôt humide par l'intermédiaire de la pluie et qui peut lui-même résulter, soit du piégeage de gaz et/ou des particules dans les gouttelettes d'eau en suspension dans les nuages qui se transforment ultérieurement en pluie (phénomène de « rain-out »), soit de la captation des gaz et/ou particules par les gouttes de pluie tout au long de leur trajet dans l'atmosphère (phénomène de « wash-out »). On s'accorde à penser que ce dernier phénomène est prépondérant à proximité d'une source alors que le premier concerne plutôt les dioxines « de fond » et leur transfert à longue distance.

Ce principe étant énoncé, plusieurs possibilités restent ouvertes. On peut mesurer, soit le résultat des retombées (analyse de la végétation naturelle ou des sols), soit les retombées elles-mêmes sur des systèmes de captation artificiels, soit les précurseurs des retombées c'est-à-dire les concentrations atmosphériques au voisinage des récepteurs.

## I. La mesure des dioxines atmosphériques

La technique de prélèvement des dioxines atmosphériques fait dans son principe, l'objet d'un large consensus international. Elle est par exemple normalisée en Allemagne (VDI 3498, 1993) et codifiée par l'USEPA (méthode T09 USEPA, 1998). Le système de prélèvement est de type préleveur à grand volume (high volume sampler ou HIVOL). Il comporte un filtre plan en matière inerte (fibre de verre ou de quartz) de diamètre 100 ou 120 mm, qui piège la phase particulaire, suivi d'une ou deux cartouches de matière adsorbante (polyuréthane en général, mais aussi résine XAD2). Le débit (méthode VDI) est de 14-15 m<sup>3</sup>/h, ce qui conduit à un volume prélevé de 350 m<sup>3</sup> environ sur 24 heures. La durée de prélèvement peut être portée à 3-4 jours sans risque majeur de perte et même à 30 jours.

On notera :

- que c'est une méthode éprouvée et validée, utilisée largement dans le monde,
- qu'elle fournit des résultats détaillés tant en ce qui concerne la répartition phase gazeuse-phase solide que la répartition par classes d'homologues et de congénères en 2,3,7,8,
- qu'elle donne une image fidèle de la ou des source(s) et qu'elle peut donc permettre d'identifier au mieux une émission donnée si on connaît le profil caractéristique de celle-ci,
- que l'on dispose d'une base de données de concentrations importante.

En contrepartie, cette méthode souffre d'un certain nombre de défauts :

- sa position assez en amont dans la chaîne des processus qui conduit à l'exposition humaine, position qui influe sur son niveau de représentativité,
- les contraintes matérielles de son utilisation : coût de l'appareillage (environ 50 kF pièce), problèmes d'implantation (source d'électricité, bruit, protection contre le vandalisme...),
- la soumission aux aléas météorologiques à court terme, du moins pour les prélèvements classiques de 24 à 72 heures. La possibilité de réaliser des prélèvements cumulés, sans perte notable, sur des périodes de l'ordre du mois ou plus permet d'atténuer ce défaut.

## II. La mesure des dépôts

Le dépôt constitue une étape supplémentaire dans la chaîne de transfert qui va de la source à l'exposition humaine. Il met en jeu de nombreux phénomènes dont les mécanismes sont encore très mal connus.

Rappelons que l'on distingue :

- le dépôt gazeux impliquant un transfert par diffusion du polluant gazeux vers la surface collectrice et une réaction d'adsorption et/ou d'absorption fixant le polluant sur cette surface,
- le dépôt particulaire sec mettant en jeu des mécanismes de diffusion (fines particules) ou de sédimentation (grosses particules). Les particules ainsi collectées ne sont pas liées à la surface de manière aussi forte que les gaz. Elles peuvent donc être détachées par des effets mécaniques (vent, pluie) et être remises en suspension ou tomber sur le sol.

L'ensemble de ces phénomènes constitue le "dépôt sec" : c'est celui qui est le plus difficile à quantifier,

- le dépôt particulaire humide avec les phénomènes de "rain-out" et de "wash-out" déjà évoqués.

Un phénomène de dépôt gazeux humide est également connu, mais il est considéré comme négligeable pour les dioxines.

Le flux de dépôt sur une surface donnée est évalué comme le produit de la concentration atmosphérique et d'une vitesse de dépôt. Cette vitesse de dépôt dépend de nombreux paramètres atmosphériques (vitesse du vent, stabilité, humidité ...), des caractéristiques physiques des polluants (gazeux ou particuliers, taille des particules, forme ...) et surtout des caractéristiques de la surface collectrice elle-même.

Le cas des dioxines est, de ce point de vue, particulièrement complexe, puisqu'elles peuvent, selon leur degré de chloration et en fonction de certains paramètres atmosphériques comme la température, se répartir de manière variable entre phase gazeuse et phase solide. On a montré ainsi que les tetra et pentadioxines et furanes, dont les congénères figurent parmi les plus toxiques, sont en proportions non négligeables dans la phase gazeuse.

Ceci signifie qu'il faut trouver un système de prélèvement qui soit aussi représentatif que possible de la surface réelle à laquelle on s'intéresse dans le cadre de l'évaluation des risques. Ce système devra donc posséder les mêmes caractéristiques de captation et de rétention vis-à-vis de la phase gazeuse et de la phase solide, ainsi que vis-à-vis de chacun des congénères pris individuellement.

Sur un plan pratique, on distinguera trois types de surfaces qui peuvent être utilisées comme capteurs pour l'évaluation des flux de dépôt :

- les surfaces artificielles : elles doivent être faciles à mettre en oeuvre et simuler de manière satisfaisante la réalité. Etant donné le nombre et la nature des contraintes évoquées ci-dessus, on conçoit qu'il est difficile de définir un système qui présenterait toutes les qualités requises,
- les végétaux "de simulation" : nous entendons par là des végétaux qui sont cultivés pour cet usage (servir de capteur fixe) et mis en place dans un réseau de surveillance,
- les végétaux naturels ou cultivés en place et les sols.

Chacune de ces catégories possède des avantages et des inconvénients.

### **A. Surfaces artificielles**

Les difficultés pour définir un type de surface optimal ont généré de multiples propositions dans la littérature, en particulier dans le cadre de recherches à caractère scientifique sur les mécanismes de transfert.

Dans la pratique, deux types de collecteurs ont été et sont encore utilisés pour la mesure des dépôts de dioxine.

- *Le collecteur BERGERHOFF*

Ce collecteur est décrit dans la norme allemande VDI 2119 partie 2. Il s'agit, dans son principe, d'un collecteur de précipitations tout à fait comparable aux dimensions près, au système décrit

dans la norme française X43 006 "Mesure des retombées par la méthode des collecteurs de précipitations".

Le collecteur BERGERHOFF est posé sur un support haut de 1,5 m environ et laissé en place pendant un mois ou plus. La surface de collecte sur la base de laquelle le flux est calculé est de 62,2 cm<sup>2</sup>, ce qui est très faible, compte tenu des valeurs de flux habituellement mesurées, surtout en milieu rural, et des quantités minimales de dioxines nécessaires pour l'analyse.

Dans les zones de faibles concentrations, on multiplie donc le nombre de collecteurs sur un même site (10 ou plus) et on constitue, par mélange des matières collectées, un échantillon unique pour analyse.

- *Le "Frisbee" inversé*

Le "Frisbee" peut se décrire comme une forme d'assiette creuse qui est utilisée dans un jeu de lancer en position normale, partie creuse en bas, en raison de ses qualités aéro-dynamiques. Cette forme peut être utilisée comme collecteur de particules si elle est placée en position inversée, partie creuse vers le haut. Conçu à l'origine pour collecter les dépôts secs de particules, ce système a été adapté pour la collecte de l'ensemble dépôt sec + dépôt humide. Un orifice aménagé au centre du "Frisbee" est équipé d'un tube qui conduit les précipitations recueillies dans un conteneur en verre. La surface interne du "Frisbee" est recouverte d'une couche de teflon qui assurerait, d'après JONES 1997, une meilleure rétention des particules organiques.

A notre connaissance, le système BERGERHOFF et le système "Frisbee" n'ont jamais fait l'objet de comparaisons sur un même site. On ignore donc s'ils ont les mêmes qualités en matière de captation et de rétention

Pour conclure sur ces méthodes, on notera :

- qu'il existe au moins deux types de systèmes de prélèvement validés par une longue pratique, principalement en Allemagne et en Angleterre,
- que la mise en oeuvre de ces systèmes est simple et peu contraignante. La principale précaution à prendre concerne la protection contre le vandalisme,
- qu'en contrepartie, la limite de détection est relativement élevée en raison de la faible surface exposée. Cet inconvénient peut être pallié soit par multiplication du nombre de préleveurs sur le site à surveiller, ce qui pose des problèmes matériels, soit en portant la durée d'exposition à plusieurs mois, ce qui peut entraîner des risques de pertes,
- que l'interprétation des résultats de dépôt en terme de responsabilité d'une source donnée peut être plus délicate que celle de prélèvements atmosphériques en raison des risques de distorsion des profils de congénères. Les résultats disponibles donnent à penser que cet inconvénient n'est pas majeur,
- que la durée de prélèvement (1 mois ou plus) rend ce système moins sensible aux aléas météorologiques à court terme et plus intégrateur que le prélèvement d'air ambiant.

On soulignera enfin que cette technique ne fait l'objet d'aucune pratique connue et systématique en France.

## **B. Les végétaux de simulation**

Dans la mesure où les surfaces artificielles qui viennent d'être décrites ne simulent que de manière imparfaite les surfaces naturelles sur lesquelles se produisent les dépôts qui peuvent entrer dans la chaîne alimentaire, l'idée est venue d'utiliser des supports plus proches de la réalité, c'est-à-dire des végétaux "de simulation" cultivés dans des sols spécialement préparés, exempts de dioxines et mis en place exprès en vue de la surveillance des retombées. Cette technique est fréquemment désignée sous le vocable de "biosurveillance" ou "biomonitoring" - voir l'exposé de J. MERSCH et B. CLAVERI.

## **C. Les végétaux naturels ou cultivés en place**

Les végétaux naturels présentent par rapport à leurs homologues "de simulation" l'intérêt d'être encore plus proches de la réalité des expositions. En contrepartie, ils peuvent présenter un certain nombre d'inconvénients liés au fait que leurs conditions de culture sont moins bien contrôlées.

La végétation naturelle constitue néanmoins, lorsque toutes les précautions de son emploi ont été respectées, un support intéressant et facile à mettre en oeuvre en tant qu'indicateur de retombées. Il faut toutefois garder en mémoire le fait que sa fiabilité en tant que capteur n'est pas garantie, en particulier en ce qui concerne la possibilité de comparer des résultats sur des périodes différentes et que l'interprétation des résultats en termes de responsabilité d'une source peut être problématique. On considère actuellement que le profil de congénères observées dans l'herbe est comparable au profil dans l'air ambiant donc, comme on l'a écrit plus haut, au profil à l'émission. Cette hypothèse est toutefois en contradiction avec ce que l'étude des mécanismes de dépôt permet de prévoir en principe. Elle est donc à utiliser avec précautions.

## **D. Les sols**

Les sols constituent le réceptacle ultime et majoritaire des retombées de dioxines. On considère que sur un sol comportant des végétaux, moins de 20 % des apports atmosphériques de dioxine restent fixés sur les végétaux, la plus grande partie se déposant sur le sol. Tous les auteurs s'accordent sur le fait que les dioxines ainsi déposées sur le sol sont immobilisées, en particulier lorsque le sol contient du carbone organique en quantité notable. Elles ne sont de plus ni photodégradées (ou très peu) ni biodégradées.

Le sol reflète donc une pollution cumulée, historique et peut difficilement être utilisé pour mettre en évidence des variations à court terme comme celles qui résultent par exemple d'une réduction locale des émissions : la grandeur significative qui est dans ce cas une différence faible entre deux valeurs élevées est grevée d'une incertitude importante.

Les principales observations concernant cette approche sont les suivantes :

- cette méthode d'évaluation de l'impact d'une source par l'analyse des sols est largement pratiquée et l'on dispose d'une base de données considérable,
- elle est facile à pratiquer car elle ne nécessite pas de logistique importante et elle met en oeuvre un outillage très simple. Elle est en outre peu contraignante pour les propriétaires des terrains concernés,

- il est néanmoins difficile de trouver sur un site, en particulier en milieu urbain ou suburbain des sols "vierges". L'importance de l'effet mémoire des sols impose un travail de recherche historique important sur leur utilisation au cours des vingt ou trente dernières années, en insistant particulièrement sur l'identification d'événements accidentels éventuellement polluants,
- il est également difficile contrairement aux apparences, de définir parfaitement l'échantillon surtout si la couche échantillonnée est de faible épaisseur (5 cm). L'effet de la mauvaise définition de l'interface sol-végétation dans les zones fortement végétalisées (prairies par exemple) est particulièrement important lorsque la profondeur de prélèvement est faible. Le problème de prise en compte ou non de la zone racinaire reste également entier,
- la variabilité des résultats est très grande sur un même site et d'un site à l'autre. Ceci implique un nombre de points de prélèvement par site relativement important, au moins une douzaine,
- l'effet cumulatif sur plusieurs années permet d'espérer une bonne possibilité de prévision des directions de dépôt maximum à partir des directions de vents dominants moyennées sur plusieurs années, pour autant que les données météo disponibles soient bien représentatives du site considéré,
- les résultats de comparaison détaillée entre les dépôts observés et les prévisions d'un modèle de dispersion sont en revanche le plus souvent assez décevants. Ceci explique pourquoi l'échantillonnage dans une direction de vent donnée a un caractère souvent systématique plutôt que déterminé par le modèle,
- l'interprétation des profils semble délicate. Des profils atypiques sont fréquemment relevés et sont attribués à "d'autres sources" sans plus de prévisions.

On notera enfin que les résultats de comparaison entre zone soumise à l'impact et zone non affectée sont souvent décevants. L'impact paraît faible même dans les cas d'émissions très importantes. Cela pourrait signifier que la fraction des dioxines retombant à proximité immédiate (quelques km) d'une source fixe est extrêmement faible.