

APPROCHE PAR MODELISATION :

Utilisation des modèles de transfert sol-plante et comparaison avec les approches biologiques.

Sébastien DENYS

Ingénieur de recherches et d'études INERIS

Direction des Risques Chroniques - Unité Déchets et Sites Pollués

Parc technologique ALATA - BP 2

60 550 Verneuil-en-Halatte

Tél. : 03-44-55-61-89 - Fax : 03-44-55-65-56 - sebastien.denys@ineris.fr

I. INTRODUCTION

De nombreux modèles de transfert sol-plante de polluants organiques sont référencés dans la littérature, les premiers datant du début des années 80. La diversité des modèles existants est liée à la diversité des compartiments de l'environnement et des processus pris en compte pour la modélisation du transfert sol - plante de polluant. Certains modèles pourront en effet considérer la plante comme un compartiment unique, alors que d'autres cibleront sur certains organes et focaliseront la modélisation sur les processus de transfert impliqués au niveau de ces organes.

Les modèles les plus couramment utilisés en Evaluation Détaillée des Risques Sanitaires (EDR santé) pour les sites et sols pollués sont simplifiés puisqu'ils ne prennent pas en compte les caractéristiques de la plante ni sa physiologie. Il s'agit, par exemple, de la relation empirique de Briggs (Briggs et al., 1982) utilisée dans certains modèles commerciaux d'évaluation de risque (i.e. HESP, Veerkamp et ten Berge, 1992). D'autres modèles, intégrant les mécanismes physiologiques impliqués dans le prélèvement des molécules organiques sont également décrits dans la littérature.

Le travail présenté ici vise à tester et à comparer certains de ces modèles, en se fondant sur les données expérimentales obtenues par le laboratoire Sols et Environnement (UMR ENSAIA-INRA) et l'IRH, pour certains végétaux couramment cultivés dans les jardins potagers ainsi que pour certaines substances organiques sélectionnées parmi les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), les benzène, toluène, éthylbenzène, xylène (BTEX) et les composés organo (halogènes) volatils (CO(H)V).

Les modèles choisis pour cette étude sont Cemos, Mackay_97, PlantX. En plus de ces trois modèles, la relation empirique de Briggs, transcrite dans des modèles d'évaluation de risque couramment utilisés est également testée dans le cadre de cette intercomparaison (Briggs et al., 1982).

II. DESCRIPTION SUCCINCTE DES MODELES UTILISES

II.1. Modèle empirique : la relation de Briggs

La relation de Briggs pour les polluants organiques, utilisée dans divers modèles d'évaluation de risque pour la santé, dont HESP, est la suivante (Equation 1) :

$$\text{Log BCF} = 0,77 \cdot \log K_{ow} - 1,52.$$

Cette relation a été obtenue à partir d'expérimentation en solution hydroponique et de la mesure du prélèvement de 18 composés organiques par de l'orge. Le log K_{ow} de ces composés était compris entre -0,57 et 3,7 (Briggs et al., 1982).

II.2. Les modèles physiologiques

Contrairement au modèle de Briggs décrit précédemment, les modèles physiologiques prennent en compte, de façon plus ou moins exhaustive, les mécanismes physiologiques de la plante impliqués dans le prélèvement et le devenir des substances chimiques, dont les polluants organiques.

Une description précise des équations utilisées pour représenter ces phénomènes au sein de cinq modèles différents a été faite au préalable de cette étude (Denys, 2002). Les trois modèles (Cemos-Plant, Plant X et MacKay_97) sélectionnés *in fine* pour le travail présenté ici ont été choisis pour la diversité des mécanismes qu'ils prennent en compte, en fonction des différents organes. Ainsi Cemos-Plant focalise sur la feuille, alors que PlantX procède à une représentation mathématique exhaustive des mécanismes physiologiques du fruit. La résolution de ces modèles repose notamment sur des équations de conservation de masse entre les flux d'entrée et de sortie du polluant dans le végétal.

Les différents mécanismes physiologiques de la plante pris ou non en compte par les trois modèles utilisés sont succinctement repris ci-dessous (**tableau 4**).

	Mackay 97	Cemos	PlantX
Prélèvement depuis le sol	X	X	X
Flux de transpiration	X	X	X
Flux d'assimilation	X	X	X
Transfert diffusif feuille -air		X	X
Déposition particulaire		X	X
Transfert diffusif sol-air		X	X
Métabolisme du polluant dans la plante	X	X	X
Dilution du polluant par croissance du végétal	X	X	X

Tableau 4. Mécanismes physiologiques considérés dans les différents modèles testés

III. PARAMETRES D'ENTREE DES MODELES

III.1. Paramètres relatifs aux substances étudiées

Les substances choisies par catégorie de polluant sont, en priorité, celles fréquemment rencontrées dans les études d'évaluation de risques sanitaires. Le choix s'est également porté sur des substances pour lesquelles un effet sur la santé humaine est connu et quantifiable. De plus, dans la mesure du possible, des substances au comportement contrasté dans les sols sont choisies. Le choix des substances s'est porté sur le naphtalène, l'antracène, le benzo(a)pyrène, et le phénanthrène pour les HAP ; sur le benzène et le toluène pour les BTEX et sur le chloroforme et le tétrachloroéthylène pour les CO(H)V.

III.2. Paramètres d'entrée expérimentaux relatifs aux compartiments environnementaux (terre, atmosphère, végétaux)

Les paramètres d'entrée relatifs aux terres et aux végétaux étudiés concernent les données physico-chimiques des terres, les données physiologiques pour les végétaux et les teneurs en substances organiques dans les terres et les poussières de l'atmosphère. Les valeurs de la majorité des paramètres sont renseignées par les expérimentations menées par les laboratoires partenaires du programme de recherche et présentées précédemment.

Lorsque pour une même modalité, plusieurs valeurs pour un paramètre sont mesurées sur plusieurs répétitions, alors la valeur d'entrée retenue est prise égale à la moyenne arithmétique des différentes valeurs obtenues. Pour certains paramètres, les techniques utilisées n'ont permis d'obtenir qu'une valeur indicative (ex. : teneur en lipide dans le végétal, surface foliaire développée par le végétal...).

Les concentrations des substances organiques dans les terres, utilisées comme paramètre d'entrée des modèles sont les moyennes arithmétiques des concentrations mesurées dans les sols pour les différentes répétitions. Dans le cas où les concentrations sont inférieures au seuil de quantification (SQ), la concentration est prise égale au SQ, comme il le serait classiquement fait dans le cadre d'une évaluation de risque. Dans le cas mixte de valeurs égales au SQ ou de valeurs mesurées, alors le paramètre choisi est égal à la moyenne arithmétique des valeurs effectivement mesurées, les autres valeurs n'étant pas prises en compte.

III.3. Paramètres d'entrée par défaut

Certains paramètres sont proposés par défaut par les auteurs des modèles et sont repris tels quels dans cette étude puisque les techniques mises en œuvre ne permettraient pas de quantifier précisément ces paramètres. Par exemple, pour le modèle Cemos-Plant, il s'agit des paramètres « weathering des particules déposées à la surface des feuilles » et « vitesse de déposition sèche de particules de l'atmosphère sur les feuilles ».

IV. METHODE DE COMPARAISON DES TENEURS MESUREES AUX TENEURS MODELISEES

La finalité de cette étude est d'examiner l'efficacité des différents modèles testés dans le but de prédire la concentration en polluant organique dans un organe consommé donné. Ceci passe par la comparaison des concentrations prédites par les modèles avec celles mesurées expérimentalement.

IV.1. Concentration de référence

La concentration de référence est celle calculée à partir des mesures expérimentales. Cette concentration de référence sera comparée aux valeurs obtenues par les modèles et permettra de comparer les valeurs prédites à celles mesurées.

La concentration de référence est la moyenne arithmétique des répétitions pour lesquelles la concentration est supérieure au seuil de quantification ou de détection.

Dans le cas où, pour une même modalité, l'ensemble des concentrations mesurées pour les différentes répétitions est inférieur au seuil de quantification, alors la concentration de référence est égale à la moyenne arithmétique des seuils de quantification, comme il le serait classiquement fait dans le cadre d'une évaluation de risques.

Dans le cas mixte où, pour une même modalité, certaines concentrations sont inférieures au seuil de quantification et d'autres lui sont supérieures, alors la moyenne arithmétique est faite en considérant uniquement les valeurs supérieures au seuil.

IV.2. Erreur relative

La comparaison de la concentration prédite par le modèle et de la concentration de référence issue des mesures expérimentales se fait par le calcul d'une erreur relative (ER), pour chaque molécule, selon les ratio exprimés ci-après :

- > si la concentration prédite est supérieure à la concentration de référence :

$$ER = (C_c - C_r) / C_r$$

- si la concentration prédite est inférieure à la concentration de référence :

$$ER = (C_c - C_r) / C_c$$

avec C_c la concentration en polluant prédite par le modèle et C_r la concentration de référence du polluant dans la plante.

IV.3. Etude paramétrique

L'étude paramétrique a pour objectif d'étudier la modification des valeurs prédites par le modèle lorsque l'un des paramètres d'entrée subit une variation, tous les autres étant maintenus constants. Différents paramètres utilisés pour le calcul des concentrations sont étudiés pour chacun des trois modèles physiologiques. Dans chaque cas, l'exemple d'un organe souterrain ou d'un organe aérien (feuille ou fruit) selon le modèle considéré, a été abordé. Pour chacune des études paramétriques, cinq valeurs sont attribuées aux paramètres étudiés : la première valeur est celle obtenue avec les données mesurées ou calculées ou entrées par défaut et est considérée comme la valeur de référence. Les quatre autres valeurs correspondent à une augmentation ou une diminution du paramètre d'un facteur 10 ou 100 par rapport à sa valeur initiale. Pour la densité, les variations, en valeur absolue, sont d'un facteur 2 ou 4.

V. SYNTHÈSE DES RESULTATS OBTENUS

Les organes sur lesquels les modélisations ont porté sont les parties consommées des végétaux étudiés.

V.1. Prédiction des teneurs en polluants organiques dans les plantes

La complexité d'un modèle et des paramètres mis en œuvre n'assure pas l'efficacité de la prédiction des teneurs en polluant organique dans les organes consommés. Les erreurs relatives varient fortement d'un modèle à l'autre et d'une substance à l'autre. En conséquence, il est difficile de préconiser un modèle particulier de façon systématique, pour la prédiction des teneurs d'une substance dans un organe consommé. Pour les substances choisies dans la présente étude et pour un modèle particulier, les concentrations prédites peuvent être du même ordre de grandeur de celles mesurées dans les végétaux pour une molécule aux propriétés physico-chimiques données, mais inadaptées pour d'autres substances aux propriétés différentes. Il est cependant possible, en fonction des modèles, de dégager certaines tendances.

La relation de Briggs surestime de façon importante certaines concentrations, en particulier celles des molécules légères et volatiles. Ainsi, systématiquement, Briggs surestime les concentrations en naphthalène, en anthracène, et de façon encore plus importante, les teneurs en chloroforme et tétrachloroéthylène (exemple pour les feuilles de laitue, **figure 10**).

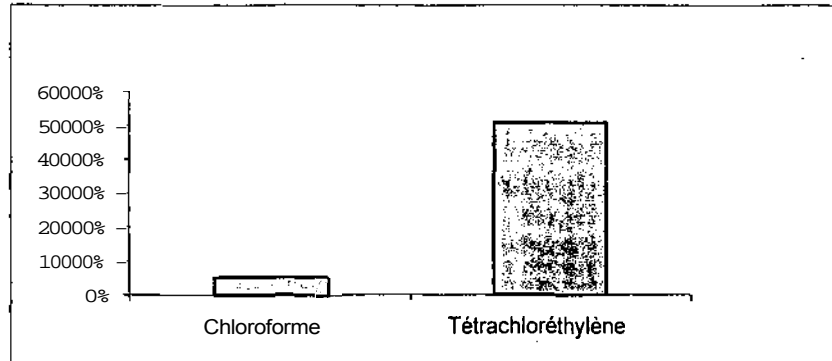


Figure 10. Exemple d'erreur relative des prédictions des teneurs en chloroforme et tétrachloroéthylène par rapport aux valeurs de référence pour la laitue, en utilisant le modèle empirique de Briggs

Pour de tels composés, cette relation pourra donc être très majorante, ce qui se répercutera sur le résultat final de l'analyse de risque. Pour des composés plus lourds et moins volatils (cas du benzo(a)pyrène et de l'antracène), la relation de Briggs se rapproche de la concentration de référence pour le benzo(a)pyrène (**figure 11**). Ces observations confirment des résultats antérieurs obtenus sur le même modèle (Empereur-Bissonnet *et al.*, 2002).

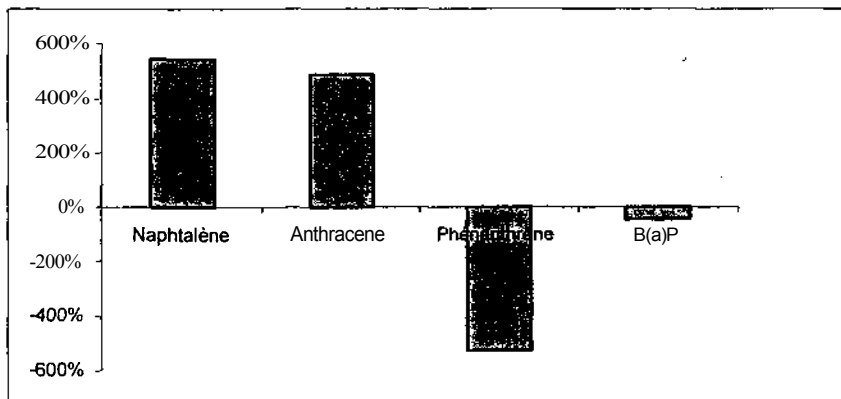


Figure 11. Erreurs relatives des prédictions des teneurs de HAP par rapport aux valeurs de référence pour les feuilles de laitue en utilisant le modèle empirique de Briggs

Pour ce qui est de la prédiction de la teneur en polluant organique dans les fruits, PlantX semble pertinent (**figure 12**), mis à part pour le cas du chloroforme dans la gousse de haricot.

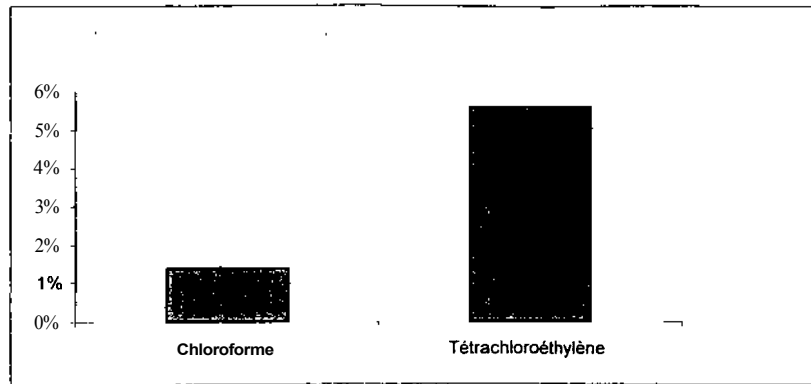
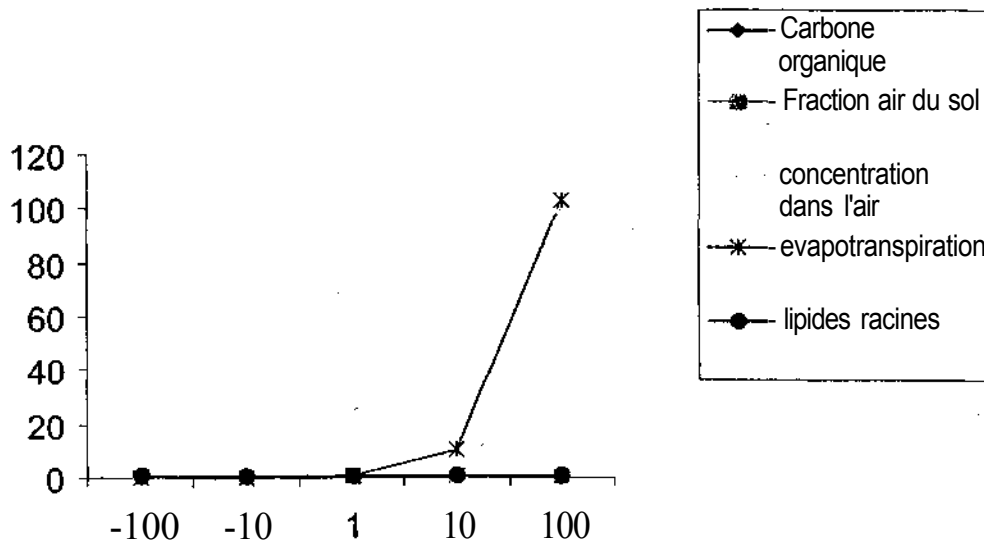


Figure 12. Erreur relative des prédictions des teneurs en chloroforme et tétrachloroéthylène par rapport aux valeurs de référence pour le fruit de la tomate et pour le modèle PlantX

V.2. Etudes paramétriques

Les études paramétriques menées parallèlement ont montré que des paramètres dont la détermination pouvait être lourde et coûteuse à mettre en œuvre pouvaient être particulièrement sensibles pour la détermination des teneurs en substances organiques dans les plantes. Par exemple, l'illustration de la **figure 13** montre la forte sensibilité de la teneur en polluant dans l'atmosphère (« concentration dans l'air ») pour la détermination de la teneur en polluant dans le fruit pour le modèle PlantX.



En abscisse : 1 est la valeur de référence (mesurée dans les conditions des expérimentations), les autres valeurs sont les facteurs d'augmentation (10, 100) et de diminution (-10, -100) du paramètre étudié. En ordonnées, les valeurs sont des facteurs de modification des concentrations dans les organes considérés, par rapport à la valeur de référence.

Figure 13. Etude paramétrique pour le modèle PlantX

Dans ce cas, l'efficacité de la mesure peut alors être limitée par le temps et le budget dont l'évaluateur dispose pour mener à bien l'étude de risque. A contrario, les paramètres dont la sensibilité n'est pas significative (par exemple la teneur en lipides dans les racines pour l'exemple ci-dessus) peuvent être utilisés par défaut dans le modèle par l'évaluateur.

VI. CONCLUSIONS

A partir de mesures expérimentales, quatre modèles de transfert sol-plante de polluant organique ont été testés. Trois de ces modèles prenaient en compte les mécanismes physiologiques impliqués dans le transfert sol-plante des substances, alors que le dernier reposait uniquement sur une relation empirique entre la lipophilicité de la substance et son transfert vers la plante. L'étude a porté sur trois catégories de polluant (HAP, BTEX et CO(H)V) et les organes consommables de quatre types de légumes produits dans les jardins potagers (tomate, haricot, laitue et carotte). Les résultats des comparaisons entre les modèles et les valeurs mesurées directement sur les végétaux montrent qu'il est difficile de préconiser un modèle (physiologique ou empirique) en particulier. En effet, la pertinence des estimations est fonction de la substance et du type d'organe considérés et peut varier d'un modèle à l'autre. Par ailleurs, la complexité d'un modèle ne garantit pas la pertinence de la prédiction. Seul pour le fruit, le modèle Plant X semble, dans les conditions de notre étude, estimer de façon correcte le transfert de substances organiques vers cet organe. Concernant les HAP et les BTEX testés dans l'étude, l'utilisation du modèle empirique de Briggs permet d'obtenir des prédictions parfois proches de celles qui pourraient être faites avec des modèles physiologiques, montrant que, dans certains cas, l'utilisation de ce modèle peut être tout aussi pertinente que celle d'un modèle physiologique. L'étude paramétrique montre que les paramètres d'entrée à mesurer en priorité varient en fonction des modèles et des organes. Les méthodes d'obtention de ces paramètres sont lourdes et coûteuses à mettre en œuvre. En conséquence, l'utilisation d'un modèle physiologique peut être pertinente mais doit toujours être raisonnée, du fait de son coût, en fonction de l'importance des voies d'exposition mettant en jeu le maillon sol-plante, dans le schéma conceptuel global de l'exposition.