



ETUDE N° 05-0662/1A

SYNTHESE DE L'ETUDE

FRANÇAIS / ANGLAIS

**CONFRONTATION DES RESULTATS DES MODELES
DE TRANSFERT DES DIOXINES ET FURANNES
A DES MESURES ENVIRONNEMENTALES REALISEES
A PROXIMITE D'UN INCINERATEUR D'ORDURES MENAGERES**

octobre 2006

**S. DENYS – INERIS
A. ROUHAN – CAREPS
C. FEIDT – ENSAIA - INPL**

Introduction et objectifs de l'étude

Les modèles d'exposition utilisés en évaluation des risques sanitaires permettent, à partir de paramètres d'entrée, d'estimer les concentrations de substances inorganiques ou organiques dans les différents compartiments de la chaîne alimentaire. Dans la pratique actuelle, le choix des équations et des logiciels est laissé libre à chaque évaluateur de risque. Face à la diversité des modèles ou logiciels existants dans la littérature, la difficulté est alors de sélectionner avec pertinence un outil et de le paramétrer correctement afin de mener à bien l'évaluation du risque.

L'objectif de ce travail est de comparer les prédictions issues de modèles utilisés couramment en évaluation du risque sanitaire à des données mesurées dans des matrices environnementales. La littérature disponible, consultée sur ce sujet, porte sur une grande variété de milieux (dose interne, sol, eau, végétaux et lait de vaches). Les conclusions sont relatives à des modèles et des composés particuliers, étudiés dans certaines conditions et testés pour certains paramètres, ce qui ne permet pas de généraliser les conclusions à l'ensemble des composés et à toutes les conditions d'utilisation des modèles. La plupart des modèles proposent des scénarios d'exposition préétablis et les équations et paramètres régissant le modèle sont plus ou moins accessibles et plus ou moins modifiables par l'utilisateur.

Matériel et Méthodes

Dans le cadre de ce travail, **les modèles** choisis sont HESP, HHRAP et CalTOX, qui sont 3 modèles d'exposition parmi les plus utilisés en France par les évaluateurs de risques. Ils sont fondés sur des équations générales permettant de prédire le transfert des molécules en fonction de leurs propriétés physico-chimiques. Une des propriétés d'entrée sensible dans le cadre de ces modélisations est l'hydrophobicité qui est estimée par le coefficient de partage entre une phase octanol et une phase eau. Ce paramètre est noté $\log P$ ou $\log K_{ow}$. Il est à noter que de nombreuses valeurs existent pour une même molécule et que la précision dans la détermination de ce paramètre est une première source d'incertitude pour les résultats fournis par le modèle.

Deux compartiments de la chaîne alimentaire sont considérés dans le cadre de cette étude : le végétal (foin) et l'animal (lait de vache). Pour ce qui est du transfert vers les foin, les modèles HESP et HHRAP se fondent uniquement sur des relations empiriques entre le facteur de bioconcentration du congénère considéré et le $\log K_{ow}$ de ce même congénère. Pour le logiciel CalTOX, la modélisation est beaucoup plus complexe et repose sur la notion de fugacité.

Pour ce qui est du transfert vers les produits laitiers, parmi les trois modèles utilisés dans le cadre de cette étude, deux utilisent une relation linéaire croissante entre hydrophobicité et transfert (HESP, CalTOX) et le troisième (HHRAP) propose un modèle exponentiel proche de celui utilisé en chaîne aquatique.

Seul le K_{ow} a été ajusté entre les 3 modèles, les autres paramètres ont été laissés identiques à ceux proposés par défaut.

Les mesures environnementales utilisées sont des mesures de dioxines et furanes réalisées autour d'un incinérateur d'ordures ménagères, dans le cadre de la gestion d'une crise sanitaire. Ces mesures ont été réalisées plusieurs années avant la présente étude et indépendamment de celle-ci. Il a été nécessaire de construire une base de donnée unique

informatisée rassemblant les données avec leurs caractéristiques géographiques et la précision des résultats congénère par congénère. Malgré l'importance du nombre de résultats, seuls les géoréférencements de sol, de foin et de végétaux correspondent aux lieux d'exposition de ces produits. En effet, pour les autres matrices, les géoréférencements correspondent à l'adresse de l'exploitant qui n'est pas forcément le lieu d'exposition. De plus, le lieu d'exposition de ces matrices a pu varier dans le temps et il n'y a pas de traçabilité des produits animaux pendant la période de fonctionnement de l'incinérateur. Les géoréférencements de produits d'origine animale sont donc sans utilité dans cette étude, ce qui a amené à un regroupement arbitraire communal des données pour chacune des matrices étudiées. Parmi l'ensemble des résultats disponibles, 8 communes ont été sélectionnées à partir de teneurs représentatives des variations constatées entre les valeurs minimale et maximale en dioxines et furannes dans le lait animal. Le gradient de concentration dans les teneurs en dioxines et furannes observé dans le lait animal, n'est pas observé dans les sols ou dans les foins. Ce gradient de concentration n'a pas pu être expliqué par des paramètres géographiques étant donné le manque de connaissance sur les caractéristiques d'exposition des produits laitiers animaux.

Les concentrations dans les végétaux ont été modélisées à partir des teneurs en dioxines et furannes mesurées dans les horizons superficiels de sol des huit mêmes communes et les concentrations dans le lait ont été modélisées à partir des mêmes concentrations dans les sols et des concentrations dans les foins. Les teneurs prédites dans les foins ou le lait ont été comparées aux teneurs mesurées dans ces mêmes matrices pour les mêmes communes. La comparaison entre donnée modélisée et mesure s'est faite par le calcul d'un écart relatif.

Résultats et discussions

Les résultats ont montré d'importantes différences dans les prédictions entre les trois modèles utilisés et par rapport aux mesures environnementales. Les écarts relatifs les plus faibles, pour le transfert vers les végétaux, sont obtenus avec HESP, qui, de plus, est le seul à surestimer certaines des concentrations par rapport à celles mesurées.. Il doit cependant être souligné que le mode de transfert le plus important de dioxines et furannes dans les végétaux, à savoir le transfert foliaire, n'a pas pu être pris en compte dans cette étude en l'absence de données sur les concentrations en dioxines et furanes dans l'air par congénère. En dépit d'une modélisation plus complexe des mécanismes de transfert vers les végétaux, les écarts relatifs obtenus avec CalTOX sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus avec HHRAP. Pour ce qui est du transfert vers le lait, les écarts relatifs les plus faibles sont obtenus avec HHRAP..

L'analyse des résultats des transferts en I-TEQ amène aux mêmes conclusions que l'étude des transferts pour chaque congénère.

La variabilité des mesures considérées comme référence doit amener à relativiser les écarts relatifs importants constatés entre valeurs prédites et valeurs mesurées. L'intérêt de l'étude menée ici réside dans la comparaison des trois modèles utilisés et dans la description des dérives spécifiques de ces modèles pour deux compartiments importants de la chaîne alimentaire.

En l'absence de mesures environnementales pour l'ensemble de la chaîne alimentaire humaine, d'absence de précision sur l'exposition des produits animaux, d'absence de données sur les concentrations dans l'air par congénère, auxquelles il faut ajouter les limites des modèles d'exposition, les comparaisons modèles/mesures et entre modèles n'ont pas pu être réalisées au niveau de l'homme.

Les résultats obtenus dans le cadre de ce projet tendent à confirmer les pratiques actuelles recommandées en évaluation du risque sanitaire. Il convient de privilégier, lorsque cela est possible, une mesure directe sur l'organisme exposé et échantillonné selon un protocole adéquat tenant compte de la spécificité du site. Dans le cas d'installation en projet, l'utilisation des modèles de transfert doit se faire de façon raisonnée en connaissant au mieux les mécanismes de transfert ainsi que les biais pouvant être induits par les modèles. Dans le cas de la prédiction du transfert de dioxines et furannes vers le végétal, il semble ainsi fondamental, afin de s'approcher au mieux des mécanismes naturels, de considérer les transferts aériens et, ainsi, de disposer de données réalistes et raisonnablement majorantes pour la modélisation de cette voie. Dans tous les cas, il importe de décrire précisément l'ensemble des hypothèses de travail utilisées et les incertitudes qu'elles engrangent sur les résultats. Ce travail montre également que les ordres de grandeur des incertitudes devraient amener à relativiser les résultats des évaluations des risques sanitaires, au moins au niveau de l'interprétation, si une analyse de sensibilité n'accompagne pas l'étude.

Introduction and objectives

In human health risk assessment procedure, multimedia software are currently used to predict concentration of contaminants in produces consumed by Humans. Prediction is based on the utilization of either empirical or mechanistic models among which a selection has to be done. This choice is crucial as it controls the accuracy of the risk assessment.

Objectives of this work was to compare predictions from three models currently used in the human health risk assessment and measurements done in several compartments : plants and animals.

Material and methods

Three models currently used in the French risk assessments were selected for this study : HESP, HHRAP and CalTOX. These models are based on general equations modeling the transfer of the dioxins and furans congeners from their physical and chemical properties. One key input parameter is the $\log K_{ow}$ or $\log P$ which accounts for the hydrophobicity of the molecule. Because for a same congener several values exist for this parameter, selection of the more accurate value is a first source of uncertainty.

In the context of this study, two compartments of the food chain are considered : the plant (hays) and the animal (cow milk) compartments. Concerning the plant transfer, HHRAP and HESP are based on empirical modeling of the bioconcentration factor from the $\log K_{ow}$. Concerning CalTOX, modeling lays on the fugacity concept and numerous input parameters difficult to assess. Concerning the milk transfer, HESP and CalTOX consider a positive linear relationship between transfer and hydrophobicity whereas HHRAP is based on an exponential modeling between the milk transfer factor and the $\log K_{ow}$.

In this study, the K_{ow} of each congener was the common input parameter among the three models and was then adjusted.

Environmental data used for comparisons with the predicted concentration of dioxins and furans in hays and milk were obtained from field surveys. These investigations were carried out independently from this study. For each data selected in the study, the geographical location of the initial position of each sample was known.

Concerning the plant compartment, modeling was carried out from the soil concentration. Results were then compared to concentration measured on plants that were grown on the corresponding soil.

Concerning the milk compartment, a strong bias was induced in the prediction of the concentration as no information were available about feed composition. Thus modeling were carried out from soil and plant data selected from one town. Results from prediction were then compared to results measured on milk from cows belonging to farms located in this town.

Among the 32 towns from which data were available, 8 towns were selected to carry out the study. Selection was done from milk concentration and care was given to select towns among which a gradient in terms of concentration was observed : I TEQ concentration varied from 34.6 pg g^{-1} and 2.6 pg g^{-1} (fat weight).

A relative deviation between modeled and measured data was then calculated to assess the difference between these two values. It was calculated as followed (Equation 1) :

$$RD = PV-MV/MV \text{ if } PV > MV$$

$$RD = PV-MV/PV \text{ if } PV < MV$$

Results and discussion

Results showed high discrepancies among the three models. Results concerning both congeners and I TEQ were similar. For the hay transfer of dioxins and furans, HHRAP and CalTOX systematically underestimated the concentration. Relative deviation values calculated from HESP were lower than RD values obtained from HHRAP and CalTOX and most of the predictions were overestimated as compared to the measured values. Despite a higher complexity for CalTOX, relative deviation values obtained from this software were close to the values obtained with HHRAP. Foliar transfer could not be taken into account as the atmospheric concentration of dioxins and furans were unknown. Concerning the milk transfer, lowest relative deviation values were obtained with HHRAP.

Numerous hypothesis had to be assumed during this work. Thus conclusions obtained from this study can not be extrapolated and are very specific to the assumptions made here. However the tendencies observed for each model might help risk assessors to be aware of the complexity of a modeling approach. When possible a direct measurement should be preferred to such an approach. However in the case of predictive scenario, the risk assessors have to know the important parameters to control to reduce the uncertainty associated to the modeling.