



Evaluation du risque sanitaire résiduel pour les populations fréquentant les plages polluées par le fioul rejeté par l'ERIKA, après dépollution

Participants

Cette étude a été conduite en collaboration par le Département Santé-Environnement de l'Institut de Veille Sanitaire et la Direction des Risques Chroniques de l'INERIS, sur la base d'un protocole établi en commun. L'InVS a eu en charge la détermination du plan d'échantillonnage des sites, en lien avec les DDASS des cinq départements concernés (Charente-Maritime, Finistère, Loire-Atlantique, Morbihan, Vendée). L'INERIS a assuré les prélèvements et les analyses chimiques. Les deux équipes ont déterminé et procédé ensemble à l'élaboration des scénarios d'exposition et à la caractérisation des risques.

Institut de Veille Sanitaire

Département Santé Environnement

Frédéric Dor, Claire Gourier-Fréry, Denis Zmirou

Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques Direction des Risques Chroniques

André Cicolella chargé de projet, Unité « Evaluation des Risques Sanitaires »
Roseline Bonnard, Unité « Modélisation et analyse économique pour la gestion des risques »

Roland Dujardin Unité « Chimie de l'Environnement »

Remerciements

INERIS:

Equipes de prélèvement sur les plages

Unité Chimie de l'Environnement (CHEN) :

ADRIEN Hervé (18/04 au 21/04) (25/04 au 28/04) BROUARD Bruno (18/04 au 21/04) CLOUP Cécile (18/04 au 21/04) GABORIAUD Céline (25/04 au 28/04) GUILLOT Francis (25/04 au 28/04) (25/05) MOIREZ Karine (25/04 au 28/04) PLAGELLAT Sylvain (21/04) (25/04 au 28/04)

Unité Evaluation des Risques Ecotoxicologiques (ECOT) :

CHAUVIRE Laurette (25/04 au 28/04)

Analyses en laboratoire

Unité Chimie de l'Environnement (CHEN) :

Laboratoire de chromatographie gazeuse et liquide – Etudes BPL : (ADRIEN Hervé, GRANIER Didier, GUILLAUMET Nadine, KOZDRAS Halina-, MOIREZ Karine, MARLIERE Maryse, VILLEY Claudine)

Laboratoire de Milieux de l'Environnement (Eaux, Sols...°) : (BLANQUET Jean-Pierre, LEPOT Bénédicte)

Laboratoire de Spectrométrie de masse : (BROUARD Bruno, GARDEDIEU Martine)

Analyse des données

Unité « Modélisation et analyse économique pour la gestion des risques » (MECO)

LEVEQUE Sandra, Evaluation du risque global lié aux HAP

Unité " Evaluation des Risques Sanitaires " (ERSA)

BOIS Frédéric, Evaluation du modèle de Hussain

KOUNIALI Amin, Traitement statistique des données

InVS:

L'InVS remercie vivement les services santé-environnement des DDASS qui ont permis, grâce à leur connaissance du terrain et de l'évolution quotidienne des rejets sur la côte des résidus de la marée noire, de procéder au choix des plages et à la localisation des points des prélèvements sur celles-ci et en particulier :

Charente Maritime : Alain VIOLEAU

Pierre HUTEAU

Finistère: Joël MADEC

Philippe ROBERT

Loire Atlantique : François MANSOTTE

Mariannick PRAT

Morbihan: Pierre-Jean CABILLIC

Vendée : Michel MARZIN

Sommaire

| 1. OB | JECTIF | 12 |
|--------------|---|----------------|
| 2. MA | TÉRIELS ET MÉTHODES | 14 |
| 2.1. | SÉLECTION DES PLAGES | 14 |
| 2.2. | PRÉLÈVEMENTS DANS LES MILIEUX ENVIRONNEMENTAUX | 15 |
| 2.2. | Echantillonnage du sable Echantillonnage de l'eau de mer Echantillonnage des rochers et des galets DOSAGE DES POLLUANTS | 17 17 |
| | Choix des polluants traceurs. Quantification. EFFETS SANITAIRES ET VALEURS TOXICOLOGIQUES DE RÉFÉRENCE | 18 |
| | 1. Effets aigus | 20 |
| 2.5. 2.5. | Populations cibles Voies d'exposition Scénarios d'exposition Calcul de l'exposition CARACTÉRISATION DES RISQUES SANITAIRES | 22 23 26 |
| 2.6. | 1. Calcul des risques | 27 |
| | SULTATS | |
| 3.1. | CONCENTRATIONS MESURÉES DANS LES DIFFÉRENTS MILIEUX | |
| | RISQUES SANITAIRES ENCOURUS 1. Intoxication aiguë chez l'enfant 2. Risques sanitaires à long terme ESSAIS DE DÉGAZAGE EN LABORATOIRE | 31 33 |
| 4. DIS | SCUSSION | 38 |
| 4.1. | STRATÉGIE D'ÉCHANTILLONNAGE | 38 |
| 4.2. | CONTRIBUTION DES MILIEUX À L'EXPOSITION ET VOIES D'EXPOSITION PRÉPONDÉRANTES | 40 |
| 4.3. | NIVEAUX DE RISQUES | 41 |
| 4.3. | 1. Risque d'intoxication aiguë. 2. Risques sub-aigus 3. Risques sanitaires à long terme. | 42 |
| 5. CO | NCLUSION | 46 |
| BIBLIO | GRAPHIE | 50 |
| ANNEV | | 5 2 |

Résumé

Origine et objectif de l'étude

Conformément à la saisine conjointe des ministères chargés de l'environnement et de la santé en date du 3 avril 2000, une procédure d'évaluation du risque a été mise en œuvre dans le but d'apporter aux autorités des informations permettant d'évaluer l'efficacité des efforts de dépollution d'un point de vue sanitaire et d'éclairer leurs décisions concernant l'ouverture ou la fermeture des plages. Le travail s'est appuyé sur une campagne de prélèvements et d'analyses chimiques *in situ* et répond à la question suivante : Quels sont les risques sanitaires, à court et long terme, encourus par des adultes et des enfants qui vont fréquenter, durant la prochaine période estivale, les plages du littoral affectées par le fioul du pétrolier Erika, après les travaux de dépollution ? Il ne s'agissait donc pas de mener une étude exhaustive de la pollution de toutes les plages ayant fait l'objet d'un nettoyage, ni de décider de la salubrité de chaque plage investiquée.

Modalités de travail

Cette étude a été effectué en étroite coopération entre l'INERIS (Direction des Risques Chroniques) et l'InVS (Département Santé-Environnement) et en liaison avec les services compétents des DDASS des 5 départements concernés (Charente Maritime, Finistère, Loire Atlantique, Morbihan, Vendée). Elle s'appuie pour partie sur des données résultant de l'étude conduite par l'INERIS en mars dernier pour évaluer les risques pour la santé liés aux travaux de nettoyage des plages et des oiseaux.

Méthode

Prélèvements

36 plages représentatives des typologies les plus fréquemment rencontrées sur les côtes du littoral (sable, galets, rochers) ont été sélectionnées. Sur chaque plage, ont été prélevés des échantillons d'eau et de sable (en zone humide et en zone sèche). Des prélèvements sur une surface déterminée de rochers et de galets ont été effectués à l'aide d'un papier absorbant imbibé de solvant. Pour permettre l'établissement de comparaisons, 7 plages considérées comme témoin car n'ayant pas subi la pollution de l'ERIKA, ont fait l'objet des mêmes prélèvements.

Essais en laboratoire

Des essais en laboratoire à l'INERIS ont été effectués pour déterminer l'importance des émissions de HAP à partir de sable ou de fioul chauffé à 45°C, afin d'apprécier l'exposition des baigneurs par inhalation de composés volatils à proximité d'éventuelles sources exposées au soleil.

Choix des polluants traceurs

Les HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) ont été retenus en raison de leurs effets toxiques connus, principalement cancer et atteinte du développement embryo-fœtal. Le choix d'autres molécules, tels les thiophènes, a été envisagé, mais les données disponibles sont insuffisantes pour pouvoir conduire une évaluation des risques pertinente.

Les 16 HAP sélectionnés par l'US EPA ont été retenus pour quantification. Les résultats sont exprimés en équivalent benzo(a)pyrène (BaP) en s'appuyant sur les facteurs d'équivalent toxique préconisés par Nisbet et Lagoy en 1992. Compte tenu des connaissances actuelles sur la toxicité des HAP et des conditions d'exposition envisagées, il a été décidé d'estimer les risques encourus par les populations pour les effets sanitaires suivants : intoxication aiguë (par ingestion accidentelle d'une boulette de fioul par un enfant en bas âge), action tératogène (atteinte du fœtus après exposition maternelle), tout cancer sauf cutané et cancer cutané.

Les valeurs toxicologiques de référence choisies pour chacun de ces effets (excès de risque unitaire et doses de référence) sont issues des documents publiés par l'US-EPA et l'OMS. Ces sources de référence ne fournissant aucun modèle permettant de quantifier le risque de cancer cutané, le choix a été fait de retenir les valeurs fournies par une étude canadienne, parue récemment dans la littérature scientifique, car elles ont semblé suffisamment valides et adaptées au cas présent, puisque traitant des risques liés aux activités de baignade.

Les scénarios d'exposition

Les voies de pénétration retenues ont été le contact cutané (eau, sable, galets ou rochers), et l'ingestion (sable et eau). La possibilité d'une inhalation de vapeur provenant de sable ou de résidu de fioul chauffé par le soleil a été prise en considération à partir des essais effectués en laboratoire, mais n'a pas été quantifiée faute de modèle adéquat.

Différents scénarios d'exposition ont été envisagés : (i) enfant ingérant accidentellement une boulette de fioul encore présente dans le sable malgré les efforts de dépollution, (ii) enfant exposé quotidiennement pendant toute la durée de son séjour, (iii) adulte (dont une femme enceinte) passant ses vacances sur le littoral, (iv) adulte ayant une activité professionnelle sur la plage (v) adulte pratiquant des sports nautiques.

Caractérisation des risques sanitaires

Les calculs de risque individuel ont été effectués pour chacun des effets retenus en combinant les résultats des expositions obtenues pour chacun des scénarios et les valeurs toxicologiques de référence pour chacun des effets. Le niveau de risque cancérogène a été évalué par rapport à un risque de 1 pour 100 000 (ou 10⁻⁵), niveau repère retenu par différentes instances nationales et internationales pour la gestion des risques environnementaux. Ce niveau de risque signifie que sur une population de 100 000 personnes exposées pendant une vie entière, l'exposition à une substance ou un ensemble de substances est susceptible d'induire un cancer en plus de ceux qui seraient advenus dans le même temps en dehors de l'exposition considérée.

Pour les effets non cancérogènes, le niveau de risque est jugé en référence à un indice de risque (IR) calculé en rapportant la dose estimée à la dose de référence (Dose Journalière Admissible par exemple) pour la substance considérée, un IR inférieur à 1 signifiant un risque négligeable.

Résultats

La qualité des milieux

Sable: la grande majorité des sables des sites considérés ont des niveaux de pollution en HAP totaux similaires à ceux de sols considérés par l'OMS comme non pollués, soit inférieurs à 100 µg/kg en HAP totaux. Seuls 7 prélèvements de sable sur 79 se situent audessus de cette limite, un seul étant proche de 1mg/kg, valeur qui correspond aux niveaux de pollution près des axes routiers. Ces niveaux sont très inférieurs à ceux mesurés sur les sites industriels pollués (de l'ordre du g/kg).

Eau: la littérature scientifique (IPCS, 1998) signale des concentrations en HAP totaux entre 0,02 ng/l et 1,8 ng/l dans l'eau de boisson, allant jusqu'à 50 ng/l dans les eaux de surface, entre 10 et 200 ng/l dans les eaux de pluie et jusqu'à 6000 ng/l dans les cours d'eau pollués. Tous les échantillons prélevés sur les plages dépassent la valeur de 50 ng/l (en HAP totaux) indiquant une certaine pollution des eaux. Cependant un seul échantillon dépasse la valeur de 200 ng/l (valeur établie pour 6 HAP), qui est la limite de potabilité préconisée par le décret 89/3, cette limite étant citée ici en référence mais ne s'appliquant pas à l'eau de mer. Les plages témoins présentent également un niveau de pollution de l'eau supérieur à celui mesuré dans des eaux non polluées, mais en deçà de la valeur limite de potabilité.

Rochers : les concentrations mesurées sur des zones des rochers propres et souillés attestent sans ambiguïté des dénominations respectives. Les mesures enregistrées sur les galets s'apparentent à celles relevées sur les zones de rochers propres.

Une corrélation entre pollution des rochers et pollution de l'eau a été mise en évidence.

Air: Les essais effectués en laboratoire sur des échantillons chauffés à 45 °C montrent que les émissions provenant du sable sont négligeables. Par contre les émissions provenant de plaques de fioul peuvent vraisemblablement atteindre, sur des rochers pollués, une concentration de plusieurs mg par m³ et par m² de rochers pour la plupart des HAP de la liste EPA, dont le benzo(a)pyrène.

Les risques sanitaires encourus

Les effets toxiques aigus

L'ingestion accidentelle d'une boulette de fioul par un jeune enfant ne permet pas de penser qu'il puisse y avoir une risque létal, en référence aux données toxicologiques disponibles chez l'homme, et aux doses toxiques chez l'animal. Le ratio « Dose ingérée »/« dose létale 50 » varie de 0.1 (scénario peu réaliste de chaque composé considéré comme le naphtalène), à 0.0001 pour chaque composé pris isolément.

Par ailleurs, la littérature décrit des effets cutanés de type phototoxique ou photosensibilisation (rougeurs, brûlures) en cas d'application sur la peau de certains HAP et d'exposition simultanée aux ultra-violets, dans un délai de quelques minutes à quelques heures après exposition. Il n'existe pas de seuil d'exposition connu et il est donc possible qu'un certain nombre d'individus sensibles développent de tels symptômes, s'ils ne prennent pas la précaution de nettoyer rapidement toute souillure de la peau. Il s'agit d'effets réversibles.

Les risques de cancer

Les scénarios pour un enfant ou un adulte fréquentant pendant 3 semaines les plages montrent un niveau de contamination médian induisant un risque très faible de l'ordre de 10^{-6} . Des expositions plus longues, chez l'enfant (2 mois), et les scénarios incluant une exposition via les rochers les plus pollués, conduisent chez l'adulte, vacancier ou professionnel, à un niveau de risque de cancer (général ou cutané) légèrement supérieur à 10^{-5} . Ces risques sont liés majoritairement à la pollution de l'eau (pour l'enfant) et des rochers (pour l'adulte). A titre de comparaison, sur la base des données de la littérature, une évaluation des risques liés à l'exposition quotidienne (vie entière), au benzo(a)pyrène, cancérogène de référence de la famille des HAP, donne un risque de l'ordre de 10^{-4} , pour les cancers généraux, avec une contribution majeure de l'alimentation. Aucune comparaison n'est possible avec les risques de cancers cutanés.

Les effets tératogènes

Le risque pour la femme enceinte est négligeable sauf en cas d'exposition cutanée significative via les rochers pollués.

Conclusions

Des conseils de prudence devraient être donnés aux parents, afin qu'ils veillent à ce que leurs enfants n'ingèrent pas par mégarde des boulettes de fioul qui restent, çà et là, sur les plages même après dépollution. Si l'effet létal est improbable, des troubles tels que fatigue, douleurs abdominales, diarrhée et anémie réversible ne sont cependant pas à exclure. Par ailleurs, il existe un risque d'effets cutanés si la peau souillée par les résidus de fioul est exposée au soleil. Une vigilance normale des personnes et l'application de consignes simples (nettoyage de la peau souillée) doivent permettre d'empêcher la survenue de ces effets aigus.

Les risques de cancer encourus par les populations sur ces plages dépolluées ne présentent pas de différences majeures avec ceux encourus sur les plages témoins sauf lorsque les travaux de dépollution n'ont pu être menés à bien complètement, ce qui a été observé sur certaines zones de rochers. Elle conforte ainsi la validité des critères d'ouverture des plages fondée sur une appréciation visuelle du résultat des travaux de dépollution.

1. Objectif

Conformément à la saisine conjointe des ministères chargés de l'environnement et de la santé en date du 3 avril 2000, une procédure d'évaluation du risque a été mise en œuvre dans le but d'apporter aux autorités des informations permettant d'évaluer l'efficacité des efforts de dépollution d'un point de vue sanitaire et d'éclairer leurs décisions concernant l'ouverture ou la fermeture des plages. Ce travail vient compléter la démarche en cours concernant le choix de critères, principalement fondés sur des observations visuelles *in situ*, qui permettront aux autorités sanitaires d'autoriser ou non la réouverture des sites de baignade.

L'évaluation des risques s'est appuyée sur une campagne de prélèvements sur sites et d'analyses chimiques en laboratoire. Elle répond à la question suivante : quels sont les risques sanitaires, à court et à long termes, encourus par des adultes et des enfants qui vont fréquenter, durant la prochaine période estivale, les plages du littoral affectées par le fioul du pétrolier Erika, après les travaux de dépollution ?

Ce travail, distinct de celui présenté en mars par l'INERIS qui avait pour objet d'évaluer les risques pour la santé liés aux travaux de nettoyage des plages et des oiseaux, se justifie par le fait que les conditions d'exposition des personnes susceptibles de fréquenter les plages du littoral atlantique pendant la période estivale sont très différentes de celles qu'ont rencontrées les bénévoles et professionnels ayant participé aux opérations de nettoyage des plages et des oiseaux touchés par le fioul de l'ERIKA. Il s'appuie néanmoins pour partie sur des données résultant de cette étude.

Ce travail n'a pas pour objet d'apprécier le risque résiduel pour chacune des plages du littoral, car cela n'est pas nécessaire pour répondre à la question posée. Il n'est pas non plus conduit pour évaluer les risques encourus par la fréquentation des plages dont le nettoyage n'est pas achevé et qui, de ce fait, ne sont pas ouvertes au public.

2. Matériels et méthodes

2.1. Sélection des plages

Un échantillonnage des sites de baignade a été effectué, tant en ce qui concerne les plages que les lieux de prélèvements pour procéder à l'analyse du niveau résiduel de contamination.

L'objectif de la sélection des plages n'est pas *in fine* de rendre un résultat spécifique pour chacune des plages sélectionnées mais de s'assurer de disposer de sites de baignade représentatifs de l'ensemble des plages du littoral qui ont été affectées par les rejets, de manière à pouvoir extrapoler les résultats de cette évaluation du risque à l'ensemble de la population amenée à fréquenter le littoral au cours de la prochaine saison. Dans ce contexte, la procédure de sélection des plages a été stratifiée par département. Cette procédure s'est appuyée sur les étapes suivantes :

- recensement, par département, de l'ensemble des plages touchées par le fioul de l'ERIKA dont I 'état après dépollution permettait d'envisager la réouverture au public.
- remplissage d'un questionnaire (annexe 1) permettant de décrire les caractéristiques de chacune des plages, telles que l'étendue linéaire du haut de plage, l'importance de la pollution, la présence de structure d'accueil des enfants, la composition de la plage en sable, rochers et/ou galets...tous critères pris en compte pour la sélection des sites, pour obtenir un échantillon de plages bien diversifié. La sélection des plages a été opérée de manière empirique au sein de chaque sous-ensemble ainsi défini.

Tous départements confondus, le nombre de plages retenues est de **36**, se répartissant comme suit : **4** pour la Charente Maritime, **5** pour le Finistère, **5** pour la Vendée, **7** pour le Morbihan et **15** pour la Loire Atlantique. Ces plages représentent environ un dixième du nombre total des plages touchées par la marée noire et en constituent ainsi un échantillon composite jugé représentatif.

En parallèle, **7** sites témoins, c'est à dire sur des plages non affectées par le fioul de l'ERIKA, ont été retenus afin d'avoir un repère concernant la pollution préexistante. Quatre d'entre eux ont été choisis dans chacun des départements précités excepté celui de Charente Maritime, les trois autres sur la côte nord du Finistère où aucune pollution liée à l'ERIKA n'a été constatée.

2.2. Prélèvements dans les milieux environnementaux

Les modalités de contact entre l'organisme humain et les polluants présents dans le milieu physique sont diverses lors de la fréquentation des plages. Il était donc nécessaire d'acquérir des connaissances sur les niveaux de concentration dans les divers milieux que sont le sable, les rochers, les galets et l'eau de mer, où s'effectuent les baignades et activités en dehors de l'eau. Les campagnes de mesure avaient pour objectif de produire des données chiffrées sur la distribution des niveaux de concentrations des HAP résiduels dans ces différents sites et milieux, après le travail de dépollution. En raison des possibles arrivées tardives de nappes de fioul, des portions du littoral pouvaient ne pas encore avoir été ouvertes aux activités de loisirs, dans certaines des plages sélectionnées; dans ces cas, seules les parties autorisées pour la baignade ou autres activités récréatives de bord de mer ont fait l'objet de prélèvements. Le jour du prélèvement, une fiche signalétique de la plage a été remplie afin de disposer d'informations complémentaires reposant sur un examen visuel du moment, notamment pour ce qui concerne l'arrivée de boulettes.

2.2.1. Echantillonnage du sable

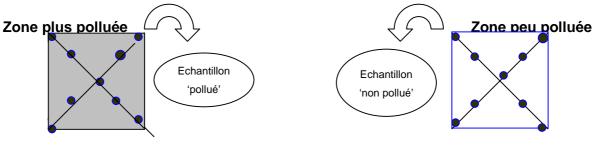
Les échantillons ont été prélevés dans le haut de plage c'est à dire dans l'espace généralement non recouvert par la mer à marée haute, mais au plus près de la zone mouillée, la plus affectée par le dépôt des nappes de fioul. La stratégie d'échantillonnage retenue a priori a consisté à déterminer deux zones dans l'étendue de sable le long de la plage. Une première zone correspond au territoire qui a été le plus fortement pollué par les plaques de fioul et pouvant encore présenter, potentiellement, un certain degré de contamination, même peu visible à l'œil nu ; la seconde zone choisie est considérée comme ayant été peu ou pas touchée, et/ou comme ayant été complètement décontaminée. Dans chacune de ces deux zones, pour chaque plage, plusieurs prélèvements (une dizaine environ) répartis sur les

diagonales de la surface considérée (10x10m) devaient être effectués (schéma de principe ci-dessous) plus un aléatoire hors de ces diagonales. Une portion des prélèvements de chaque zone a ensuite été mélangée afin d'obtenir un échantillon composite représentatif de la qualité du sable de chaque zone. Chaque point de prélèvement a correspondu à un carottage de 10 cm de diamètre, sur 10 à 20 cm maximum de profondeur.

Pour les plages témoins, la distinction en deux zones n'avait pas lieu d'être. En revanche, l'obtention de l'échantillon composite a été effectuée selon les mêmes règles.

Schéma de principe des deux sites de prélèvement sur une plage et constitution de l'échantillon composite

Limite de plage



Limite de l'eau à marée haute

Dans la mesure du possible (car il fallait tenir compte des heures des marées), des échantillons composites du sable des parties de plage découvertes à marée basse ont été préparés. La même procédure de constitution d'un échantillon composite a prévalu sans distinction de deux zones propres et polluées en raison du va et vient de la mer homogénéisant l'état du sable. Chaque point de prélèvement a correspondu également à un carottage de 10 cm de diamètre, sur 10 à 20 cm maximum de profondeur.

2.2.2. Echantillonnage de l'eau de mer

Deux prélèvements d'eau de mer ont été effectués, au même point, en flacon verre de un litre, à une distance de 2 à 5 mètres du bord de mer. Au moment du prélèvement, les échantillons ont été acidifiés à pH voisin de 1, pour bloquer l'activité biologique.

2.2.3. Echantillonnage des rochers et des galets

La stratégie d'échantillonnage retenue a reposé sur le même principe que pour les échantillons de sable. Sur chacune des plages concernées une zone considérée fortement polluée et une zone reconnue faiblement ou pas polluée ont été identifiées.

Les prélèvements sur les rochers situés en bordure de mer ou constituant dans certains cas les digues amenant à la mer ont été effectués sur les parties horizontales par lavage d'une surface déterminée (1 m² pour les zones propres, inférieures pour les zones sales) avec un chiffon en coton imbibé d'un mélange 50/50 acétone / n-hexane.

Pour les galets, on réalise un échantillon composite au jugé en ne prenant que les galets ayant un diamètre inférieur à 10 cm (prélèvements en surface et en profondeur du sable jusqu'à 10 à 15 cm). Le mode de prélèvement des polluants présents sur les galets est le même que pour les rochers.

2.3. Dosage des polluants

2.3.1. Choix des polluants traceurs

Les polluants présents dans le fioul de l'Erika sont très nombreux. On y retrouve principalement les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), les thiophènes et des composés organiques volatils notamment les composés aromatiques monocycliques (benzène et ses homologues). Le choix des polluants à inclure dans la quantification des risques sanitaires s'est fondé sur leur présence avérée dans un fioul vieilli de quelques semaines et sur les connaissances toxicologiques acquises jusqu'à maintenant.

Seuls les HAP ont été retenus dans cette étude car ils sont encore présents en quantité significative dans le fioul après quelques semaines de vieillissement. De plus, les connaissances toxicologiques les concernant sont suffisamment établies pour pouvoir procéder à une évaluation du risque sanitaire. En revanche, les composés organiques volatils, tels le benzène, et les thiophènes n'ont pas été retenus. Pour les premiers, l'analyse des risques sur les personnes, bénévoles et professionnels, ayant participé aux opérations de nettoyage des plages a montré que ceux-ci étaient très faibles (INERIS, 2000). Or le vieillissement du fioul depuis ces quelques mois a conduit inéluctablement à une diminution de sa composition en composés organiques volatils. Il n'est donc pas pertinent de les retenir dans cette évaluation des risques. Pour les thiophènes, l'absence de données toxicologiques interdit toute possibilité de quantification des risques.

2.3.2. Quantification

Les analyses réalisées ont visé à quantifier les 16 HAP retenus par l'Agence de Protection de l'Environnement des Etats-Unis (US EPA) dont la liste fait autorité au niveau mondial. Les protocoles mis en œuvre sont détaillés en annexe 2. Certains HAP sont des cancérogènes dont le potentiel variable s'exprime par un Facteur d'Equivalence Toxique (FET), en référence à celui du benzo(a)pyrène fixé arbitrairement à 1. Parmi les FET proposés, ceux de Nisbet et Lagoy (1992) ont été choisis pour la présente analyse car ils sont les plus pénalisants et les plus fréquemment retenus (annexe 5).

En outre des essais en laboratoire ont été réalisés pour évaluer les émissions des 16 HAP et autres composés volatils à la température représentative d'un sable pollué ou d'un rocher recouvert de fioul chauffé par le soleil, soit 45°C. Le protocole mis en œuvre est inspiré de la détermination de la pression de vapeur par la méthode de saturation des gaz et est exposé en annexe 3.

2.4. Effets sanitaires et valeurs toxicologiques de référence

Compte tenu des connaissances actuelles sur la toxicité des HAP et les conditions d'exposition envisagées, il a été décidé d'estimer les risques encourus par les

populations pour les effets sanitaires suivants : intoxication aiguë (par ingestion accidentelle d'une boulette de fioul), action tératogène (malformation du nouveau-né après exposition maternelle principalement pendant la grossesse), tout cancer sauf cutané et cancer cutané (effets chroniques). Il sera développé ici plus particulièrement les effets sanitaires non pris en compte au cours de l'évaluation des risques conduite sur les populations de bénévoles et de professionnels ayant participé aux opérations de nettoyage des plages et des oiseaux (INERIS, 2000), à savoir les effets aigus après ingestion et ceux liés à l'exposition conjointe aux HAP et aux rayonnements ultra-violets. Les effets à long terme et tératogène, détaillés dans le document précité, ne seront que succinctement décrits.

2.4.1. Effets aigus

• Mortalité et autres effets

Les données relatives à la toxicité aiguë des HAP sont limitées, sauf pour le naphtalène, plus étudié du fait de sa plus grande volatilité et des expositions accidentelles qui peuvent en découler. On peut caractériser cette toxicité aiguë comme faible à modérée, eu égard aux doses létales 50 (DL50), valeur d'exposition qui entraîne la mort de la moitié des animaux de laboratoire testés, et qui sont généralement au-delà de 500 mg/kg de poids corporel après administration orale (IPCS 1998).

Tableau 1. Récapitulatif des doses létales des HAP, ou entraînant des effets aigus chez l'animal (IPCS 1998)

| HAP | DI | DL50 (mg/kg) | | s effets* |
|----------------|----------|----------------|-------|-----------|
| Naphtalène | Chien-ch | at : 1000-4000 | Chien | : 400 |
| | Rat | : 500-9000 | | |
| | Souris | : 350 –700 | | |
| Benzo(a)Pyrène | Souris | : 1600 | - | |
| Chrysène | Souris | : 2000 | - | |
| Phénanthrène | Souris | : 700-1000 | - | |
| | | | | |
| Total 16 HAP** | Souris | : 350 | - | |

^{*}anémie hémolytique, diarrhée

Ces données concernent l'animal de laboratoire. Chez l'homme, des doses létales de 2-3 g chez l'enfant et 5-25 g chez l'adulte ont été décrites pour le seul naphtalène,

^{**} hypothèse prudente de la DL50 la plus faible (350 mg/kg; naphtalène chez la souris)

à partir d'observations ponctuelles (ingestion de boules de naphtaline). L'administration orale de divers HAP chez l'homme n'a pas montré d'effet à moyen terme en deçà de doses de 75 mg/kg pour le pyrène (néphrotoxicité), de 125 mg/kg pour le fluorène (hématotoxicité) et le fluoranthène (néphrotoxicité) et 175 mg/kg pour l'acénaphtène (hépatotoxicité).

Réactions cutanées et oculaires

Les données sont très lacunaires chez l'homme. L'anthracène, le benzo(a)pyrène et le naphtalène sont des irritants cutanés ; les deux premiers ont été rapportés dans des cas de sensibilisation aux ultra-violets. Chez l'homme comme chez l'animal, ils peuvent entraîner des érythèmes et une pigmentation de la peau, mais il n'est pas possible, en l'état actuel des connaissances, de déterminer un niveau d'exposition associé à ces effets. Chez le cochon d'Inde, cette sensibilisation est réversible en 24 heures. Par ailleurs, l'exposition préalable aux UV a accru le pouvoir cancérigène du BaP étalé sur la peau de souris.

Des réactions de type phototoxique sont décrites lorsque la peau contaminée par certains HAP (anthracène, fluoranthène, acridine, phénanthrène) est exposée aux ultra-violets (Casarett et al., 1996). Des rougeurs et des brûlures peuvent survenir quelques minutes à quelques heures après exposition.

Le naphtalène est aussi associé à un phénomène qui lui est propre : une ingestion répétée, pendant quelques jours de 0,5 à 1g/kg de poids corporel entraîne rapidement une cataracte chez le rat, sans doute par l'action de métabolites produits dans le foie. Ce phénomène ne semble pas avoir été décrit chez l'homme.

2.4.2. Effets chroniques

effet tératogène

Les données disponibles proviennent d'expérimentations menées sur des animaux et concernent principalement le benzo(a)pyrène. Sa toxicité sur la reproduction dépend de l'animal, de la voie d'administration et des doses administrées. Ainsi une dose minimale induisant un effet nocif observé (DMENO) a été fixée à 10 mg/kg/j (Ridgeon and Neal, 1965; McKenzie and Angevine, 1981). Dans une autre étude, une

application cutanée d'un résidu de fioul sur des rats a permis de fixer une dose sans effet nocif observé (DSENO) à 250 mg/kg/j (RIVM, 2000).

Pour le benzo(a)pyrène, les facteurs d'incertitude conventionnels de 10x10x10 sont appliqués pour prendre en compte le passage d'un DMENO à un DSENO et les variabilités inter et intra espèces. La recommandation de l'OMS préconise d'appliquer un facteur 10 supplémentaire pour un effet tératogène. Cela conduit à proposer de retenir une dose de référence de 1 µg/kg/j. Si l'on considère le fioul dans sa globalité, en appliquant le même raisonnement, la valeur de référence à retenir est de 250 µg/kg/j.

L'intérêt de l'étude du fioul dans sa globalité est de tenir compte des interactions entre les différents HAP entrant dans sa composition. Cependant, la multiplicité des voies d'exposition de la population amenée à fréquenter les plages (ingestion de sable, ingestion d'eau, contact cutané) ne permet pas de choisir la valeur toxicologique de référence calculée avec du fioul total car celle-ci ne concernait que la voie cutanée. Aussi, la survenue des effets tératogènes sera appréciée au regard de la valeur toxicologique de référence du BaP, qui, comme le paragraphe précédent le montre, est la plus pénalisante.

• Tout cancer sauf cutané

Un certain nombre de HAP conduisent à l'apparition de cancers aux localisations multiples, conséquences soit d'une action sur le lieu de contact soit d'une action à distance après passage puis distribution dans l'organisme. La valeur toxicologique de référence est un « excès de risque unitaire ». Par voie orale, la valeur couramment admise est celle de l'US EPA, fixée à 7,3 par mg d'équivalents BaP par kg de poids corporel et par jour. Une étude récente propose une valeur de 1,2 par mg d'équivalents BaP par kg de poids corporel et par jour (Gaylor et al. 2000). Bien que cette dernière étude paraisse plus rigoureuse, dans l'incertitude actuelle sur l'ampleur du risque, le choix de la valeur la plus pénalisante a été préférée pour ce travail.

Cancer cutané

Concernant le risque de cancer cutané, aucun organisme reconnu ne propose de valeur toxicologique de référence. Cependant, un excès de risque unitaire a été produit en s'appuyant sur une analyse des données animales (Schmähl et al. 1977; Krewski et al. 1991; Hussain et al. 1998). Au vu des publications, l'expérimentation animale et l'approche statistique paraissant rigoureuses, ce travail a été retenu pour la présente évaluation du risque. L'excès de risque unitaire est de 37 par mg d'équivalents BaP par kg de masse corporelle et par jour.

L'existence d'une relation entre la masse et la surface corporelle totale d'une personne a permis à Hussain et al. (1998) d'exprimer cette valeur de référence en fonction de la masse corporelle. Cette valeur peut être utilisée dès lors que la totalité de la surface corporelle de la personne est en contact avec le milieu pollué. La présente étude portant sur des estivants dont au moins la moitié du corps est jugée, en contact avec les milieux potentiellement pollués, il a été décidé de retenir cette valeur toxicologique de référence. En revanche, son utilisation dans le cas de surfaces de contact restreintes, telles les seuls mains et pieds lors de promenades dans les rochers souillés n'est pas pertinente, en l'état actuel des connaissances.

2.5. Estimation de l'exposition

2.5.1. Populations cibles

Les scénarios d'exposition ont été élaborés pour des enfants et des adultes (dont les femmes enceintes) en s'attachant à les rendre les plus réalistes possibles.

2.5.2. Voies d'exposition

Les possibilités de contact de l'organisme humain avec les milieux de l'environnement au cours de la fréquentation des plages sont diverses : périodes de repos allongé sur le sable, jeux dans le sable ou activités dans les rochers, baignades. Les voies d'exposition suivantes ont ainsi été retenues :

- exposition cutanée dans l'eau ;
- exposition cutanée avec le sable et les rochers (surface de contact a priori décroissante);

- ingestion de sable ;
- ingestion d'une boulette de fioul mélangé à du sable ;
- ingestion d'eau ;
- Inhalation de gaz et particules.

L'inhalation de particules et gaz émis par l'eau, le sable ou les rochers est envisageable mais cette voie semble ne pas pouvoir constituer une voie d'exposition significative compte tenu de la granulométrie du sable et du dégazage qui se sera déjà produit, des mois après l'échouage du pétrolier. De plus, les niveaux de concentrations dans l'air qui avaient été mesurés au cours de la période de pollution importante des plages étaient déjà modestes. Cependant, afin de comprendre l'influence d'une température élevée rencontrée en période estivale, un test en laboratoire a été conduit à l'INERIS pour apprécier le potentiel de volatilisation du fioul mélangé à du sable ou persistant sur les rochers.

2.5.3. Scénarios d'exposition

Enfant

Deux scénarios ont été envisagés : l'un accidentel après ingestion d'une boulette de fioul, l'autre retraçant une exposition quotidienne au cours de la période des vacances estivales.

1^{er} scénario

Le scénario accidentel d'un enfant âgé de 2 à 4 ans ingérant une boulette de fioul accolé au sable a été envisagé afin de répondre à la question du risque immédiat. Le volume de la boulette est estimé à 1 cm³, constitué à 80 % de fioul et à 20 % de sable accolé. Il n'a pas été envisagé que cette ingestion puisse se reproduire quotidiennement, la vigilance de l'enfant et des adultes se renforçant pour le dissuader de toute nouvelle tentative.

2^{ème} scénario

 Le scénario estimant une exposition répétée quotidiennement, repose sur différents paramètres (tableau 2) permettant d'encadrer le risque encouru. Deux durées d'exposition ont été retenues pour l'enfant. La première est de 3 semaines, correspondant à la durée d'un séjour estival classique. La deuxième est de 2 mois, ce qui peut correspondre à la situation d'enfants dont les parents ont une activité professionnelle locale, ou d'enfants séjournant tout l'été en famille sur le littoral. Quotidiennement, la période d'exposition de l'enfant se répartit en 4 heures d'activités en contact avec le sable et 2 baignades en mer d'1 heure chacune. Les polluants au contact de la peau de l'enfant sont éliminés 2 heures après les activités de plage à l'occasion d'un bain ou d'une douche. Au cours des activités de sable et jusqu'à la prise de douche ou de bain, la moitié de la surface corporelle est considérée comme recouverte de sable. Pendant ses jeux, le jeune enfant est amené à ingérer 100 mg de sable et au cours des activités de baignade il avale de manière volontaire ou involontaire de l'ordre de 50 ml d'eau de mer tous les jours.

Adulte

Trois scénarios (scénario plage; scénario plage + rochers; scénario activités nautiques) permettant d'encadrer le risque encouru par un adulte lors de la fréquentation estivale des plages du littoral ont été élaborés. Deux catégories d'estivants ont été distinguées : les vacanciers qui fréquenteront les plages du littoral pendant 3 semaines et les professionnels qui travailleront quotidiennement sur ces plages durant 2 mois complets.

1^{er} scénario : scénario plage :

La totalité de l'activité se déroule sur la plage, en contact avec le sable ou dans l'eau. La période d'exposition quotidienne se décompose pour le vacancier en 4 heures de contact avec le sable, soit allongé (sans serviette : hypothèse délibérément pénalisante), soit participant à des jeux avec ses enfants, et 2 baignades dans la mer d'1 heure chacune. Jusqu'à la prise de douche, 2 heures après les activités de plage, la moitié de la surface corporelle est considérée comme recouverte de sable. Pour le professionnel, la durée de contact quotidienne avec le sable est de 8 heures, en considérant que seuls les pieds sont recouverts de sable. De plus, son activité le conduit à se baigner à 2 reprises pendant 1 heure. Au cours des baignades, le vacancier comme le professionnel peut être amené à avaler environ 100 ml d'eau de mer par jour.

2^{ème} scénario : scénario plage + rochers

Ce scénario envisage le cas d'un vacancier qui a les mêmes activités de plage et de baignade que dans le scénario précédent mais qui de plus se promène quotidiennement sur les rochers, ce qui entraîne une contamination des plantes des pieds et des paumes de mains avec le fioul restant sur ces rochers, pendant une durée totale de 6 heures jusqu'à l'élimination des polluants par une douche. Pour le professionnel, ce scénario considère une durée de contact des paumes des mains et des pieds avec les rochers de 1 heure par jour ; pendant 7 heures supplémentaires, le professionnel marchant sur la plage aura les pieds couverts de sable. Pour le vacancier comme pour le professionnel, ce scénario prend en compte 2 baignades d'une heure chacune, avec la possibilité d'ingérer alors 100 ml d'eau de mer.

3^{ème} scénario : activités nautiques

Ce scénario correspond au cas du vacancier qui consacre la totalité de son temps sur la plage (2 fois trois heures) en activités nautiques. L'eau est le seul milieu contribuant à son exposition, par contact cutané et ingestion d'eau.

Quels que soient les scénarios, les valeurs affectées aux différents termes entrant dans le calcul de la dose d'exposition correspondent aux valeurs moyennes ou médianes relevées par l'USEPA dans son document intitulé « Exposure Factor Handbook » (US EPA 1996). Concernant les masses et surfaces corporelles, les valeurs prises en compte sont une moyenne des données chez l'homme et la femme.

Enfin, les annexes 5 et 6 détaillent les caractéristiques physico-chimiques des 16 HAP sélectionnés et les taux d'absorption des HAP par la peau en fonction du milieu en contact.

Tableau 1. Paramètres d'exposition.

| Paramètres | Symbole | Adulte | Enfant |
|--|-----------|--|------------------|
| Masse corporelle (kg) | Р | 65 | 16 |
| Nombre de jours d'exposition (j) | NJ | 21 (vacancier) 60 (professionnel) | 21 ou 60 |
| Surface corporelle totale (m²) | A_t | `` 1,82 | 0,656 |
| Surface des mains (m²) | A_{m} | 0,079 | |
| Surface des pieds (m²) | A_p | 0,105 | |
| Quantité de sable ingéré (kg/j) | Q_s | 0 | 10 ⁻⁴ |
| Quantité d'eau ingérée (I/j) | Q_{e} | 0,1 | 0,05 |
| Volume de la boulette de fioul ingéré (m³) | V_b | | 10 ⁻⁶ |
| Pourcentage volumique de fioul dans la boulette | f | | 80% |
| Masse de sable adhérant à la peau (kg/m²) | $Q_{s,p}$ | 0,28 | 0,28 |
| Epaisseur de la couche de fioul adhérant sur la plante des pieds et des mains (mm) | е | 1 | 1 |
| Durée du contact du sable avec la peau (h/j) | Ts | 6 (vacancier) 7 ou 8 (professionnel) | 6 |
| Durée de contact du fioul sur la plante des pieds et des mains (h/j) | Tf | 6 (vacancier) 1 (professionnel) | 6 |
| Nombre de bains par jour | | " 2 ´ | 2 |
| Durée du bain de mer (h/bain) | Te | 1 (vacancier et professionnel) 3 (activités nautiques) | 1 |

2.5.4. Calcul de l'exposition

Pour toutes les estimations des expositions, seront utilisées d'une part les valeurs de concentration médiane de la distribution des échantillons prélevés, et d'autre part le percentile 90 (en faisant l'hypothèse que 10 % de la population connaît des expositions supérieures à cette valeur), afin d'encadrer les estimations du risque. Les médianes et percentile 90 des concentrations de HAP sont calculés en faisant l'hypothèse que les concentrations inférieures à la limite de détection analytique sont considérées comme étant égales à la moitié de cette limite de détection. Les calculs des doses d'exposition sont réalisés sous Excel version 5. L'annexe 7 détaille les formules de calcul pour chacune des modalités de contact avec les HAP présents dans les différents milieux.

2.6. Caractérisation des risques sanitaires

2.6.1. Calcul des risques

Les calculs de risque individuel ont été effectués pour chacun des effets retenus en combinant les résultats des expositions obtenues pour chacun des scénarios et les valeurs toxicologiques de référence pour chacun des effets. Les formules des calculs sont présentées en annexe 8.

Pour les effets non cancérogènes, le niveau de risque est classiquement jugé en référence à un indice de risque (IR), encore appelé ratio de danger, calculé en rapportant la dose estimée à la dose de référence pour la substance considérée. Pour les effets cancérogènes, le niveau de risque est calculé en multipliant la dose d'exposition par l'excès de risque unitaire.

2.6.2. Niveaux repères

• Risque cancérigène

Le niveau de risque cancérogène est apprécié par rapport à un risque de 1 pour 100 000 (ou 10⁻⁵), niveau repère retenu par différentes instances nationales et internationales pour la gestion des risques environnementaux. Ce niveau de risque signifie que sur une population de 100 000 personnes exposées pendant une vie entière, l'exposition à une substance ou un ensemble de substances toxiques est susceptible d'induire un cancer en plus de ceux qui seraient advenus dans le même temps en dehors de l'exposition considérée. Il s'agit d'une valeur indicative ; d'autres sont possibles. Ainsi, l'US EPA prend en considération un risque repère de 10⁻⁶ pour un risque collectif touchant l'ensemble d'une population, et la valeur maximale de 10⁻⁴ pour juger du risque auquel un individu peut être exposé. En outre, les niveaux de risques ainsi calculés résultent de la mise en œuvre de modèles mathématiques permettant d'extrapoler à l'homme des données expérimentales obtenues sur l'animal, en faisant en sorte, par précaution, que les incertitudes inhérentes à ce type d'approche viennent systématiquement majorer le risque évalué.

Par ailleurs, c'est la comparaison entre les résultats issus des concentrations mesurées sur les plages polluées par le fioul de l'Erika et sur les plages témoins qui

permet d'apprécier le surcroît d'exposition et de risque associé à la présence résiduelle de polluants dans les milieux dépollués.

Risque non cancérogène

Dans ce travail, ce raisonnement s'applique aux effets tératogènes. Un risque inférieur à 1 est considéré comme négligeable.

• Concentrations environnementales

Le décret du 3 janvier 1989, reprenant des dispositions déjà préconisées par l'OMS, fixe une concentration limite de la somme de 6 HAP dans les eaux destinées à la consommation humaine de 200 ng/l (DGS, 1995). Les HAP concernés sont le fluoranthène, le benzo(b) fluoranthène, le benzo(k) fluoranthène, le benzo(a)pyrène le benzo(g,h,i)pérylène et le indéno (1,2,3-cd)pyrène. En outre, le benzo(a)pyrène seul ne doit pas dépasser 10 ng/l. Les résultats des concentrations mesurées dans l'eau ont été comparées à cette valeur seuil. Il est important de noter que les 6 HAP retenus pour apprécier la qualité d'une eau ne renseignent en rien sur le potentiel cancérogène de cette eau.

3. Résultats

3.1. Concentrations mesurées dans les différents milieux

Compte tenu de la difficulté d'identifier distinctement sur chaque plage des zones « propres » et « non propres », le nombre d'échantillons composites s'élève en pratique à une quarantaine pour le sable sec, dont la majorité concernent les zones réputées dépolluées. La distinction s'avérant très difficile à opérer, elle a été abandonnée.

Les tableaux 3 et 4 synthétisent les résultats obtenus dans les différents milieux environnementaux analysés, en distinguant les sites affectés par le fioul d'Erika et les plages témoins. La séparation faite, lors de l'échantillonnage du sable, entre un secteur 'propre' et un autre apparemment plus pollué n'a pas montré de différence significative (test de Wilcoxon) quant aux teneurs de HAP (respectivement 6.1 et 8.2 ppb); les valeurs dans le sable sont donc réunies en un seul groupe dans la suite du rapport. On observe que les concentrations des HAP dans le sable et dans l'eau des plages ayant été polluées par le fioul de l'Erika et des plages témoins sont assez voisines, tandis que les niveaux plus élevés de polluants persistant dans les rochers des sites pollués témoignent de la plus grande difficulté à assurer un total nettoyage de ce type de milieu. Les résultats complets des plages sélectionnées sont en annexe 9. Par ailleurs, une corrélation entre pollution des rochers et pollution de l'eau a été mise en évidence (coefficient de corrélation égal à 0,57).

Tableau 2. Médiane, moyenne et percentile 90 des concentrations des 16 HAP de référence exprimées en équivalents BaP.

| | | Plages ayant été polluées | | | | | ages témo | oins |
|---------------|--------|---------------------------|---------|---------|---------|--------|-----------|---------|
| | Eau | Sable | Rochers | Rochers | Fioul | Eau | Sable | Rochers |
| | (ng/l) | (µg/kg) | propres | sales | pur | (ng/l) | (µg/kg) | (µg/m²) |
| | | | (µg/m²) | (µg/m²) | (mg/kg) | | | |
| Médiane | 13,1 | 1,5 | 14,7 | 10201 | 129 | 9,5 | 0,6 | 0,05 |
| Moyenne * | 23,3 | 7,8 | 33,0 | 11906 | 126 | 10,1 | 0,7 | 0,06 |
| Percentile 90 | 41,8 | 14,4 | 70,0 | 23780 | 142 | 11,2 | 1,6 | 0,07 |

^{*} pour le calcul de la moyenne, les concentrations inférieures à la limite de détection ont été fixées à la moitié de cette valeur

Tableau 3. Médiane, moyenne et percentile 90 des concentrations des 16 HAP de référence dans les différents milieux d'exposition.

| | | Plages ayant été polluées | | | | | ages témo | oins |
|---------------|--------|---------------------------|---------------|---------------|---------|--------|-----------|---------|
| | Eau | Sable | Rochers | Rochers | Fioul | Eau | Sable | Rochers |
| | (ng/l) | (µg/kg) | propres | sales | pur | (ng/l) | (µg/kg) | (µg/m²) |
| | | | $(\mu g/m^2)$ | $(\mu g/m^2)$ | (mg/kg) | | | |
| Médiane | 78,7 | 9,0 | 29,5 | 48790 | 629 | 47,0 | 3,6 | 0,94 |
| Moyenne * | 197 | 48,3 | 203 | 53505 | 623 | 60,0 | 9,7 | 1,75 |
| Percentile 90 | 410 | 78,1 | 378 | 116299 | 684 | 185 | 28,3 | 3,12 |

^{*} pour le calcul de la moyenne, les concentrations inférieures à la limite de détection ont été fixées à la moitié de cette valeur

3.2. Risques sanitaires encourus

3.2.1. Intoxication aiguë chez l'enfant

En s'appuyant sur les données de composition du fioul en différents HAP (INERIS, 2000), on peut estimer que la quantité de HAP totaux résultant de l'ingestion d'une boulette de fioul de 1 gramme est comprise entre 0.8 et 2.4 milligrammes, selon l'origine du fioul analysé ('mesures INERIS' ou 'mesures Total-Fina')(tableau 4). Cela correspond, pour un enfant pesant 16 kg, à une dose de 0.15 mg/kg. Si on considère le seul naphtalène, à partir des mesures Total-Fina qui sont les plus pénalisantes, la dose est de 0.02 mg/kg.

Tableau 4. Estimation des quantités en certains HAP dans une boulette de fioul (1 cm³ estimé égal à 1 gramme) susceptible d'être ingérée (µg).

| НАР | mesures INERIS | mesures Total-Fina |
|--------------|-------------------|-----------------------|
| Naphtalène | 80 | 400 |
| BaP | 60 | 250 |
| Chrysène | 200 | 400 |
| Phénanthrène | 160 | 500 |
| Acénaphtène | 40 | 120 |
| Anthracène | 20 | 90 |
| Fluoranthène | 20 | 40 |
| Pyrène | 120 | 240 |
| Total 16 HAP | 800 | 2400 |

Pour l'enfant ingérant accidentellement des boules de naphtaline, des quantités létales équivalant à 2 à 3 grammes de naphtalène, ont été rapportées (IPCS, 1998). Le rapport entre la dose ingérée et la dose létale varie de 1 pour 1000, si l'on considère tous les HAP comme équivalent au naphtalène, à 1 pour 5 000 si l'on considère le naphtalène seul. Cela revient à dire qu'un enfant devrait ingérer environ 800 boulettes de 1 gramme chacune pour atteindre la quantité létale de 2 grammes.

Chez l'adulte, la quantité létale pour le naphtalène varie de 5 à 15 grammes. En tenant compte de la masse corporelle respective de l'adulte et de l'enfant, ces quantités létales correspondent à des doses équivalentes de l'ordre de 150 mg/kg.

Les HAP pour lesquels existent des données toxicologiques pour des effets aigus, chez l'animal sont présentées dans le tableau 5 (estimations arrondies aux valeurs supérieures). Il n'existe pas de données relatives aux HAP totaux.

Tableau 5. Doses létales 50 par voie orale de quelques HAP chez l'animal

| HAP | DL50 (mg/kg) | | | | |
|--------------|-----------------|---------------|--|--|--|
| Naphtalène | Chien-ch | at: 1000-4000 | | | |
| - | Rat | : 500-9400 | | | |
| | Souris | : 350 –700 | | | |
| BaP | Souris | : > 1600 | | | |
| Chrysène | Souris | : 2000 | | | |
| Phénanthrène | Souris | : 700-1000 | | | |
| Fluoranthène | Rat | : 2000 | | | |
| Anthracène | Souris | : 18 000 | | | |

Ces données de létalité chez l'animal indiquent que le naphtalène est le composé le plus toxique. Cependant, les doses en jeu sont supérieures d'un facteur 2 pour la souris à 60 pour le rat, en regard de celles rapportées pour un enfant. Si l'on compare la dose ingérée dans une boulette de fioul à la DL50 chez la souris (350 mg/kg) le rapport est de l'ordre de 1 à 2000, si l'on considère l'ensemble des HAP comme équivalent au naphtalène à 1 pour 17 000 si l'on considère le naphtalène seul. L'hypothèse conférant la même toxicité que le naphtalène à tous les HAP semble majorante compte tenu des DL50 très élevées pour certains composés, tel l'anthracène.

Chez l'adulte, des doses sans effets de l'ordre de 100 mg/kg ont été rapportées pour des effets aigus liés à une hépatotoxicité, une néphrotoxicité ou des troubles hématologiques, pour d'autres HAP que le naphtalène (IPCS). On ne peut cependant pas exclure la survenue de troubles bénins tels que des nausées, des maux de ventre, de la fatigue.

Sur la base de ces données humaines et animales, on peut écarter le risque mortel chez l'enfant, et a fortiori pour l'adulte. Cela n'élimine pas pour autant l'apparition de

troubles moins graves.

3.2.2. Risques sanitaires à long terme

Scénarios adulte

Le tableau 7 décrit les résultats des calculs des excès de risque de cancers généraux associés à l'absorption de HAP par les différentes voies de contact, pour les adultes en vacances sur les plages du littoral et pour ceux qui exercent une activité professionnelle au cours de la saison estivale. Les excès de risque les plus élevés, qui dépassent la valeur indicative de 10⁻⁵, sont observés pour le scénario impliquant un temps de contact quotidien avec les rochers dont le nettoyage n'a pas été effectué de manière complète. Tous les autres scénarios conduisent à des résultats inférieurs. Ces dernières estimations des excès de risques ne sont pas différentes de celles calculées à partir des concentrations mesurées sur les plages témoins.

Tableau 6. Estimations des excès de risques de cancers généraux liés à la fréquentation des plages par un adulte, selon le niveau de pollution résiduelle des milieux

A. Adulte en vacances

| | Plages ayant | été polluées | Plages t | émoins |
|---|--|------------------------------------|--|------------------------------------|
| Scénario sans promenade dans les rochers | médiane 1.2 10 ⁻⁶ | P90 2.7 10 ⁻⁶ | médiane 1.1 10 ⁻⁶ | P90 1.2 10 ⁻⁶ |
| Scénario avec promenade dans des rochers nettoyés | 1.3 10 ⁻⁶ | 2.9 10 ⁻⁶ | - | - |
| Scénario avec promenade dans des rochers témoins | - | - | 1.1 10 ⁻⁶ | 1.2 10 ⁻⁶ |
| Scénario avec promenade dans des rochers encore sales | 3.5 10 ⁻⁵ | 8.1 10 ⁻⁵ | - | - |
| Activités nautiques | 2.2 10 ⁻⁶ | 4.6 10 ⁻⁶ | 1.9 10 ⁻⁶ | 1 10 ⁻⁶ |

B. Adulte ayant une activité professionnelle

| | Plages ayant été polluées | | Plages t | émoins |
|---|---------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | médiane | P90 | médiane | P90 |
| Scénario sans promenade dans les rochers | 3.5 10 ⁻⁶ | 7.6 10 ⁻⁶ | 3.1 0 ⁻⁶ | 3.4 10 ⁻⁶ |
| Scénario avec promenade dans des rochers nettoyés | 3.6 10 ⁻⁶ | 7.7 10 ⁻⁶ | | |
| Scénario avec promenade dans des rochers témoins | - | - | 3.1 10 ⁻⁶ | 3.4 10 ⁻⁶ |

Scénario avec promenade 2.1 10⁻⁵ 4.9 10⁻⁵ dans des rochers encore sales

Le tableau 8 exprime les résultats d'excès de risque de cancer cutané pour les adultes en vacances et pour ceux pratiquant une activité professionnelle sur les plages. La surface corporelle très restreinte exposée directement au fioul lors des promenades dans les rochers ne permet pas le calcul d'un risque, pour cette voie de contact, en l'état actuel des connaissances scientifiques. Le résultat fourni se limite à l'estimation d'une dose d'exposition, exprimée en ng/kg pc/j. La pratique d'une activité nautique quotidienne conduit à un niveau d'excès de risque proche de la valeur repère de 10⁻⁵ pour la fraction de la population exposée aux niveaux supérieurs de la distribution (percentile 90). Pour un adulte en vacances s'adonnant à des activités classiques de plages mais qui ne se promène pas dans les rochers, les écarts des risques entre sites dépollués et sites témoins sont virtuellement nuls en valeurs médianes, et légèrement supérieurs à la valeur indicative de 10⁻⁵ pour le percentile 90. Dans ces deux cas, l'exposition via des rochers sales, qui vient s'ajouter à celle apportée par les autres milieux, est plus de 10 fois supérieure à celle calculée pour l'eau et le sable ensemble ; elle ne saurait être négligée.

Tableau 7. Estimations des excès de risques de cancers cutanés et des expositions par voie cutanée pour un adulte en vacances sur la plage, en fonction de la contamination des milieux

A. Adulte en vacances

| | Plages ayant été polluées | | Plages témoins | |
|--|---------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | médiane | P90 | Médiane | P90 |
| Scénario sans promenade dans les rochers (risque) | 4.1 10 ⁻⁶ | 8.8 10 ⁻⁶ | 3.6 10 ⁻⁶ | 4.0 10 ⁻⁶ |
| Activités nautiques (risque) | 7.1 10 ⁻⁶ | 1.5 10 ⁻⁵ | 6.3 10 ⁻⁶ | 6.8 10 ⁻⁶ |
| Exposition via les rochers pollués en ng/kg pc/j (*) | 3.1 | 7 | | |

^{*} ng/kg pc/j : nanogramme par kilogramme de poids corporel par jour

B. Adulte ayant une activité professionnelle

| | Plages ayant été polluées | | Plages 1 | témoins |
|---|---------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | médiane | P90 | Médiane | P90 |
| Scénario sans promenade dans les rochers (risque) | 1.2 10 ⁻⁵ | 2.6 10 ⁻⁵ | 1.1 10 ⁻⁵ | 1.2 10 ⁻⁵ |
| Exposition via les rochers pollués en ng/kg pc/j | 1.4 | 3.3 | - | - |

Scénarios enfant

Les excès de risque de cancers cutanés sont les plus élevés pour les enfants qui passent deux mois sur les sites de baignade du littoral (tableau 9). Leur exposition provient principalement du contact avec l'eau de mer lors des moments de baignade. Les différences des niveaux de risque entre sites dépollués et sites témoins sont, encore une fois, très faibles pour les concentrations médianes ; elles conduisent à un niveau de risque légèrement supérieur à la valeur repère 10⁻⁵ pour la fraction de la population exposée aux valeurs plus élevées des concentrations dans les milieux (90ème percentile).

Tableau 8. Estimations des risques de cancers liés à la fréquentation des plages pour un enfant en vacances ou résidant sur site pendant toute la période estivale, selon le niveau de pollution résiduelle des milieux

A. Cancers généraux

| | Plages ayant | été polluées | Plages | témoins |
|-----------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | Médiane | Médiane P90 | | P90 |
| Vacancier | 3.7 10 ⁻⁶ | 6.0 10 ⁻⁶ | 1.6 10 ⁻⁶ | 1.8 10 ⁻⁶ |
| Résident | 7.1 10 ⁻⁶ | 1.3 10 ⁻⁵ | 4.6 10 ⁻⁶ | 5.0 10 ⁻⁶ |

B. Cancers cutanés

| | Plages ayant été polluées | | Plages témoins | |
|-----------|---------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | Médiane | P90 | médiane | P90 |
| Vacancier | 6.0 10 ⁻⁶ | 1.3 10 ⁻⁵ | 5.3 10 ⁻⁶ | 5.8 10 ⁻⁶ |
| Résident | 1.7 10 ⁻⁵ | 3.7 10 ⁻⁵ | 1.5 10 ⁻⁵ | 1.7 10 ⁻⁵ |

• Les effets tératogènes

Les résultats sont décrits dans le tableau 10. Ils indiquent que, quelle que soit la situation, le niveau d'exposition en équivalent BaP des femmes enceintes fréquentant les plages est inférieur, voire nettement inférieur, à la valeur toxicologique de référence au-dessus de laquelle on peut commencer à craindre la manifestation de ces effets. Encore une fois, la seule situation occasionnant une exposition excessive est la fréquentation de rochers encore pollués.

Tableau 9. Effets tératogènes : indice de risque* exprimé en pourcentage lié à la fréquentation des plages pour une femme enceinte en vacances pendant la période estivale, selon le niveau de pollution résiduelle des milieux

| | médiane | P90 |
|---|---------|------|
| Scénario sans promenade dans les rochers | 0.01 | 0.07 |
| Scénario avec promenade dans des rochers nettoyés | 0.01 | 0.07 |
| Scénario avec promenade dans des rochers encore sales | 0.72 | 1.8 |

3.3. Essais de dégazage en laboratoire

Les émissions volatiles ont été mesurées en laboratoire sur des échantillons, respectivement de sable et de fioul pur. Les résultats sont présentés en annexe 10. Pour le sable, les concentrations des HAP quantifiés sont quasiment systématiquement inférieures au seuil de détection analytique. En revanche, les émissions issues du fioul brut sont conséquentes. Une telle situation ne peut se rencontrer que sur des milieux non dépollués, ou des rochers non complètement nettoyés. Compte tenu des conditions expérimentales, il n'est cependant pas possible de traduire ces teneurs en doses effectivement inhalées par une personne, faute de modèle adéquat. Ce travail complémentaire permet cependant de montrer que des composés volatils peuvent être émis en quantité importante lors d'une forte élévation de température, comme celle provoquée par le soleil sur les sites de baignade où une pollution résiduelle est encore présente.

4. Discussion

4.1. Stratégie d'échantillonnage

La connaissance de la distribution des concentrations de HAP dans les divers milieux —eau, sable, rocher- avec lesquels la population est susceptible d'entrer en contact lors de la fréquentation des plages nettoyées du fioul provenant des cales de l'ERIKA est passée par un double niveau d'échantillonnage. La première a consisté à sélectionner des plages permettant d'identifier les typologies les plus fréquemment rencontrées sur les côtes du littoral, la deuxième visait à définir les endroits opportuns sur chacune des plages afin de prélever les échantillons caractérisant au mieux la contamination des milieux.

Sans vouloir prétendre être représentative au sens statistique du terme, la procédure de sélection des plages a permis de combiner un choix de plages dans chacun des cinq départements touchés par la marée noire avec un regroupement en trois typologies distinctes : plage de sable, plage de sable et de galets ou rochers et plages composées de sable, galets et rochers. A partir de là, l'importance de la pollution initiale, le jugement porté par les inspecteurs des DDASS sur l'état actuel du site après travaux de dépollution et la présence de structures d'accueil pour les enfants ont complété les critères de sélection.

Compte tenu de l'importance des dépôts de fioul dans chacun des départements, le plus grand nombre de plages a été retenu en Loire Atlantique et le plus petit en Charente Maritime. Le moindre nombre de plages en Vendée, en regard de la pollution qui l'a touchée, s'explique par le fait que, dans ce département, les plages sont d'un seul type, composées quasi-exclusivement de sable.

La caractérisation des niveaux de pollution des milieux environnementaux est plus complexe. En effet, la localisation des emplacements des prélèvements, le volume de milieu pollué à recueillir ou la durée du prélèvement, et enfin le choix du moment de ce prélèvement au cours de la journée sont autant de paramètres susceptibles d'influencer les résultats analytiques. Sans pour autant pouvoir les maîtriser complètement, il est nécessaire d'en avoir une bonne connaissance afin d'éviter des

interprétations abusives. Compte tenu de l'étendue et de la surface des plages, de la diversité de la pollution qui les a touchées, les échantillons des milieux avaient pour objectif de dégager une distribution des concentrations susceptibles d'être mesurées sur n'importe quelle autre plage du littoral plutôt que d'acquérir une connaissance précise de la pollution sur des plages particulières.

Ainsi, que ce soit dans le sable, les galets ou les rochers, des endroits *a priori* contrastés de pollution ont été choisis sur chacune des plages sélectionnées. Pour ces milieux, le moment du prélèvement dans la journée n'avait pas d'importance (il est à noter qu'ils ont été effectués en dehors d'une période d'arrivage de nouvelles boulettes ou plaques de fioul sur le rivage). Les résultats des mesures ont montré que ces deux zones ne présentaient pas de différence et pouvaient ainsi être rassemblées pour déterminer les médianes et percentiles 90 de la distribution des concentrations. Ceci est d'autant plus vrai qu'il a été très difficile de distinguer ces deux types de zones sur la majorité des plages, conséquence d'une uniformité de la pollution sur les sites touchés. Le carottage sur une profondeur de 10 à 20 cm avait pour objet de se rapprocher des modalités d'exposition des enfants, lesquels sont le plus souvent amenés à jouer en creusant des trous dans le sable.

La grande majorité des sables investigués ont des niveaux de pollution comparables à ceux de sols considérés comme non pollués par les HAP (< 100 (µg /kg en HAP totaux). Seuls 7 prélèvements de sable sur 79 se situent au dessus de cette limite, un seul étant proche de 1mg/kg, qui correspond aux niveaux de pollution près des axes routiers (exprimés en HAP totaux). Ces niveaux sont très inférieurs à ceux mesurés sur les sites industriels pollués (de l'ordre du g/kg).

Concernant, les prélèvements d'eau, le moment de la journée, voire les conditions météorologiques rencontrées pouvaient influer sur le résultat analytique. Cependant, cela n'était pas contrôlable en pratique. Des mesures indépendantes ont pu être demandées par les services santé-environnement des DDASS, et leur comparaison montre que celles enregistrées pour cette étude sont du même ordre de grandeur, ce qui conforte leur utilisation pour les calculs des doses auxquelles est exposée la population.

La littérature scientifique (IPCS, 1998) signale des concentrations en HAP totaux entre 0,02 ng/l et 1,8 ng/l dans l'eau de boisson, allant jusqu'à 50 ng/l dans les eaux de surface, entre 10 et 200 ng/l dans les eaux de pluie et jusqu'à 6000 ng/l dans les cours d'eau pollués. Tous les échantillons prélevés sur les plages dépassent la valeur de 50 ng/l (en HAP totaux) indiquant une certaine pollution des eaux. Cependant un seul échantillon dépasse la valeur de 200 ng/l (valeur établie pour 6 HAP), qui est la limite de potabilité préconisée par le décret 89/3, cette limite étant citée ici en référence mais ne s'appliquant pas à l'eau de mer. Les plages témoins présentent également un niveau de pollution de l'eau supérieur à celui mesuré dans des eaux non polluées, mais en deçà de la valeur limite de potabilité.

La dépollution des rochers était particulièrement difficile à réaliser en certains endroits, conséquence notamment de difficultés d'accès. Ainsi, les zones des rochers présentaient, pour les zones des plages les plus touchées, une hétérogénéité décelable. Les prélèvements ont alors été orientés sur des rochers où des traces de pollution étaient visibles, sur la base de l'hypothèse que, au cours d'une promenade, les personnes auraient immanquablement un contact des pieds et des mains avec une de ces taches restantes sans que la peau soit nécessairement nettoyée immédiatement après ce contact.

Au total, on peut considérer que les prélèvements effectués décrivent de manière fiable la qualité des milieux sur les plages ayant fait l'objet de travaux de dépollution, et jugées, par les responsables locaux, ouvrables au public. Les résultats montrent que cette décision fondée sur des critères visuels est valide, mais que la situation particulière des rochers peut encore être, ponctuellement, préoccupante.

4.2. Contribution des milieux à l'exposition et voies d'exposition prépondérantes

L'analyse des milieux contribuant le plus à l'exposition est très instructive. Concernant les scénarios pour les adultes, les niveaux d'exposition proviennent principalement des contacts cutanés avec le fioul présent sur les rochers dont le nettoyage n'est pas complètement terminé : cela représente 85% de l'exposition pour les scénarios décrivant les activités des professionnels et plus de 95% pour ceux décrivant celles des vacanciers. En l'absence de promenade sur les rochers, quel que soit le scénario, l'exposition est liée quasi

exclusivement au contact avec l'eau (>99%). La pollution des rochers est donc prépondérante dans la quantification de l'exposition.

Les résultats des essais en laboratoire de dégazage du sable et de fioul renforcent ces conclusions sur l'importance relative des milieux dans l'exposition globale des personnes. En effet, même si ces données ne permettent pas de quantifier l'apport par voie respiratoire, des plaques de fioul encore présentes sur les rochers vont, au cours des périodes de chaleur, relarguer des HAP en quantité non négligeable, lesquels viendront s'additionner à celles entrant en contact avec la peau des personnes se promenant dans ces zones.

Pour les enfants, c'est le contact avec l'eau qui contribue majoritairement à l'exposition, et notamment au risque de cancer cutané. Le risque de cancer général est lié au contact avec l'eau.

On remarque donc que le contact avec un sable provenant d'une plage atteinte par la pollution ne représente jamais une source importante de polluant pour l'exposition résiduelle des populations d'adultes et d'enfants.

Enfin, pour les plages témoins, le risque est lié au contact cutané avec l'eau, quels que soient le scénario et le type de risque.

4.3. Niveaux de risques

4.3.1. Risque d'intoxication aiguë

L'ingestion d'une boulette de fioul par les enfants en bas âge est une préoccupation importante. C'est pourquoi ce travail s'est attaché à répondre à la question du risque toxique que ce geste représente. Après dépollution des plages, il peut en effet rester des petites boulettes de fioul mélangées avec du sable. Celles-ci sont d'une taille voisine de 1 cm³, compte tenu de la taille des mailles des tamis utilisés pour les travaux de dépollution.

Les comparaisons effectuées avec les données, en nombre limitées, rapportées chez l'enfant lors d'ingestion de boules de naphtaline, montrent des rapports compris entre 1 à 1000 et 1 à 10 000 entre la dose potentiellement ingérée et celle induisant

un effet létal. Ceci permet d'écarter tout risque mortel pour un enfant si celui-ci ingérait une boulette de fioul encore présente sur la plage.

Il faut cependant attirer l'attention des parents sur la survenue de troubles tels que fatigue, maux de ventre, diarrhée et anémie réversible qui sont susceptibles de survenir après une telle ingestion. La vigilance qui s'impose est d'ailleurs de même nature que celle qui doit inspirer tous les parents en regard de produits toxiques ménagers ou industriels.

Un autre type de risque aigu doit être pris en considération, celui concernant les effets sur la peau d'une exposition combinée aux HAP et aux rayonnements ultraviolets. Des manifestations de type rougeurs ou brûlures peuvent survenir quelques minutes à quelques heures après l'exposition. Il n'existe pas d'indication quant à l'existence d'un effet seuil. Cela plaide pour recommander un nettoyage immédiat de la peau en cas de souillure, à l'aide d'huile végétale et en évitant tout recours à des solvants du type white spirit.

4.3.2. Risques sub-aigus

Les indices de risque calculés pour les effets tératogènes susceptibles d'être associés aux HAP (notamment le BaP) sont inférieurs à 1 sauf pour le scénario d'une femme enceinte se promenant pieds nus sur des rochers très pollués. Cela rejoint les résultats précédents concernant l'implication des rochers encore pollués dans l'exposition et les risques.

4.3.3. Risques sanitaires à long terme.

Les risques de cancers (cutanés ou généraux) sont faibles. En regard du niveau de risque associé à la qualité des plages témoins – lesquelles ne sont pas exemptes de HAP – on peut même les considérer comme négligeables, sauf dans les scénarios correspondant aux plages les plus contaminées (sable et rochers, pour les valeurs correspondant au 90^{ème} percentile); sur ces dernières, les marques de pollution étaient encore nettement présentes lors des prélèvements (plaques de fioul sur les rochers, notamment), en raison d'apports récents de fioul sur la côte, ce qui contre-indique la baignade et les autres loisirs de plage. L'objectif de ce travail n'était pas

d'apprécier les risques liés à la fréquentation de plages non dépolluées. La logique recommande donc de les interdire à la baignade, dans l'attente des travaux de décontamination.

On notera cependant que ces estimations des excès de risque de cancer sont sans doute surestimés, du fait de la procédure de calcul qui consiste à étaler l'exposition encourue pendant la courte période estivale (3 semaines à 2 mois, selon les scénarios) sur la vie entière, et à appliquer à ces estimations les coefficients d'excès de risque unitaire de la littérature spécialisée. Ces coefficients résultent d'expérimentations animales avec exposition 'vie entière'. Or rien ne permet, en l'état actuel des connaissances, d'assurer la validité de cette extrapolation sur le long terme. Au contraire, l'exemple de l'exposition aux cancérogènes de la fumée de tabac montre que la relation qui relie le risque de cancer bronchique et la dose est proportionnelle à la durée du tabagisme, terme élevé à la puissance 4 ou 5 (Doll et al., 1978). Cet exemple montre que l'application de ces modèles d'extrapolation sur un risque d'effet à long terme est donc très incertaine. Cela appelle certainement la conduite de recherches toxicologiques pour clarifier cette relation entre dose cumulée et durée d'exposition.

Les données sont très rares et ne permettent guère de comparaison avec d'autres situations professionnelles ou environnementales semblables. Hussain et al. (1998) ont calculé le risque de cancer cutané pour des personnes ayant, par hypothèse, des activités nautiques très régulières tout au long de leur vie dans des eaux polluées par les HAP. Leurs estimations pour des expositions de quelques jours par an pendant 30 ans, sont de l'ordre de 10⁻⁴ pour les plus élevées, c'est à dire pour les lieux où la pollution des sédiments entrant en contact avec le corps de la personne exposée est la plus importante. La comparaison avec la présente étude est cependant limitée car les durées d'exposition sont très différentes, l'une s'étalant sur une longue période de vie, l'autre s'intéressant à la seule période estivale consécutive à la pollution des plages par le fioul déversé par l'Erika.

Une comparaison avec les niveaux de HAP mesurés dans différents milieux dans l'environnement général est envisageable. En s'appuyant sur les données d'exposition ubiquitaire de la littérature, des excès de risque de cancers généraux

ont été estimés pour les plus élevés, à environ 10⁻⁴ (Santonato, 1981). A partir de la seule alimentation, ces excès de risque seraient légèrement supérieurs à 10⁻⁵, montrant ainsi, l'importance de ce vecteur dans l'exposition (de Vos, 1990; Pfannhauser, 1991). La contribution des HAP présents dans l'atmosphère est nettement moindre (Guicherit, 1985). En revanche, il n'y a pas de données permettant d'effectuer une comparaison concernant les excès de risques de cancers cutanés liés à une exposition aux HAP, même en milieu professionnel.

5. Conclusion

Cette évaluation du risque sanitaire résiduel encouru par les vacanciers qui vont fréquenter, pendant la prochaine période estivale, les plages du littoral ayant fait l'objet de travaux de dépollution après la marée noire du pétrolier Erika montre que les risques sont faibles, tant à court terme qu'à long terme.

Concernant les effets immédiats, des conseils de prudence doivent cependant être donnés aux parents, afin qu'ils veillent à ce que leurs jeunes enfants n'ingèrent pas par mégarde des boulettes de fioul qui restent, çà et là, sur les plages même après dépollution. Si l'effet létal est improbable, des troubles tels que fatigue, douleurs abdominales, diarrhée et anémie réversible ne sont cependant pas à exclure. Par ailleurs, il existe un risque de réactions cutanées si la peau souillée par les résidus de fioul est exposée au soleil. Une vigilance normale des personnes et l'application de consignes simples (nettoyage de la peau souillée) doivent permettre d'empêcher la survenue de ces effets aigus.

Les risques de cancer et d'effets tératogènes encourus par les populations sur les plages dépolluées ne présentent pas de différences majeures avec ceux encourus sur les plages témoins sauf lorsque les travaux de dépollution n'ont pu être menés à bien complètement, ce qui a été observé sur certaines zones de rochers. Ainsi, bien que cette étude n'ait pas été conduite pour répondre à cette autre question, on peut imaginer que le risque associé à la situation de plages non encore décontaminées ou récemment atteintes par de nouvelles plaques de fioul serait significatif, ce qui devrait conduire à leur fermeture provisoire. Elle conforte ainsi la validité des critères d'ouverture des plages fondés sur une appréciation visuelle, par les autorités sanitaires locales, du résultat des travaux de dépollution.

Un autre résultat de cette étude est le constat que la présence de polluants dans le milieu n'est pas l'apanage des sites contaminés en décembre 1999. Il est établi en effet que la contamination des côtes peut résulter de la pratique, ancienne, du nettoyage en mer des cuves par certains navires. La qualité de l'eau en témoigne, avec une pollution par les hydrocarbures retrouvés également dans les échantillons

prélevés sur les plages témoins. L'acquisition de connaissances plus complètes sur la qualité chimique des plages du littoral français, mais aussi microbiologique paraît donc pertinente. Elle est renforcée par le fait que les risques évalués ne l'ont été que pour une seule période estivale et ne préjuge en rien des conséquences d'une exposition répétée au cours de la vie.

D'autres besoins d'amélioration des connaissances ont été révélés par ce travail. On retiendra en particulier la nécessité d'une meilleure quantification des facteurs d'absorption des HAP par les différentes barrières biologiques, et de recherches toxicologiques sur l'impact de l'exposition à des polluants chimiques dans les sols, sur de courtes périodes mais à des niveaux relativement importants. En effet, des travaux permettant de mieux comprendre les relations entre la durée de l'exposition et les différents types de risques sont indispensables pour rendre plus cohérentes l'utilisation et l'extrapolation à de telles situations d'exposition relativement courte, de valeurs toxicologiques de référence établies pour des périodes très longues. En outre, il s'avère nécessaire de mettre en œuvre des études visant à établir des valeurs toxicologiques de référence pour la voie cutanée qui puissent tenir compte de la surface corporelle en contact avec le polluant. Il apparaît également nécessaire de disposer des données toxicologiques aiguës et chroniques sur les autres composants du fioul et notamment les thiophènes. Enfin, une étude nationale sur les pratiques des vacanciers et des professionnels en contact avec les plages apparaît également souhaitable aujourd'hui. Si les scénarios construits pour mener à bien cette évaluation du risque semblent réalistes et raisonnablement majorants, ils gagneraient à être, dans l'avenir, fondés sur des données quantitatives validées.

UNITES UTILISEES

Les unités de masse utilisées sont le milligramme (mg), le microgramme (µg), le nanogramme (ng).

$$1 \text{ mg} = 1000 \mu \text{g} = 1000 000 \text{ ng}$$

Ppm : partie par million . Concentration d'une substance dans une matrice en poids ou en volume. Une concentration massique s'exprime en ppm massique : 1 ppm = 1 mg/kg . Une concentration volumique s'exprime en ppm volumique : 1 ppm = 1c m^3/m^3 .

Un ppb (partie par billion) correspond au millième du ppm (1µg/kg)

Une concentration peut aussi s'exprimer dans une unité de masse par volume :

mg/ m^3 = milligramme par mètre cube μ g/ m^3 = microgramme par mètre cube ng/ m^3 = nanogramme par mètre cube

$$1 \text{ mg/m}^3 = 1000 \mu\text{g/m}^3 = 1 000 000 \text{ ng/m}^3$$
.

La pollution de surface s'exprime en mg/m², en µg/m² ou en ng/m²

$$1 \text{ mg/m}^2 = 1 000 \text{ } \mu\text{g/m}^2 = 1 000 000 \text{ ng/m}^2$$

Bibliographie

Casarett and Doull's Toxicology The basic science of poisons Eds Curtis Klaassen Mc Graw Hill, 5^{ème} édition, 1996, 1111p.

De Vos RH, Van Dokkum W, Schouten A, de Jong-Berkhout P. Polycyclic aromatic hydrocarbons in Dutch total diet samples (1984-1986). *Food and Chemical Toxicology*. 1990;28(4):263-268.

Direction Générale de la Santé, Code de la Santé Publique, Eaux destinées à la consommation humaine, juin 1995.

Doll R, Peto R. Cigarette smoking and bronchial carcinoma: dose and time relationships among regular smokers and lifelong nonsmokers. *Journal of Epidemiology and Community Health*. 1978;32:303-313.

Gaylor D.W., Culp S.J., Goldstein L.S., Beland F.A., Cancer risk estimation for mixtures of coal tars and benzo(a)pyrene. *Risk Analysis*. 2000;20-81.

Guicherit R & Schulting FL. The occurrence of organic chemicals in the atmosphere of the Netherlands. *Science of the Total Environment* 1985;43:193-219.

Hussain M., Rae J., Gilman A., Kauss P. Lifetime risk assessment from exposure of recreational users to polycyclic aromatic hydrocarbons. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 1998;35:527.

IPCS Environmental Health Criteria 202, Selected Non-heterocyclic Polycyclic Aromatic Hydrocarbons. WHO, Genève 1998, 883 p.

INERIS, rapport de synthèse et rapports sectoriels : Evaluation des risques sanitaires et environnementaux résultant du naufrage de l'ERIKA et des opérations de nettoyage des côtes. Mars 2000. 32p.

Krewski D., Gaylor D., Szyszkowicz M. A model-free approach to low-dose extrapolation. *Environmental Health Perspectives* 1991;90:279.

McKenzie K.M. and Angevine D.M., Infertility in mice exposed in utero to benzo(a)pyrene. *Biology of Reproduction* 1981;24(1):183-191.

Nisbet I.C.U., Lagoy P.K. Toxic Equivalency Factors (TEFs) for Polycyclic Ariomatic Hydrocarbons (PAHs). *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 1992;16:290-300.

Pfannhauser W. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in food and selected vegetables in Austria. *Mitt Geb Lebensmittelunters Hyg.* 1991;82:66-79.

Santodonato J, Basu D, & Howard PH. Multimedia human exposure and carcinogenic risk assessment for environmental PAH. In: Bjorseth A & Dennis AJ ed. Polynuclear aromatic hydrocarbons: Chemistry and biological effects. Columbus, Ohio. *Battelle Press.* 1980;435-454.

Santodonato J., Health and ecological assessment of polynuclear aromatic hydrocarbons.

Journal of Environmental Pathology and Toxicology 1981;5:1-364.

Ridgeon R. and Neal J., Effects of feeding benzo(a)pyrene on fertility, embryos and young mice. *Journal of the National Cancer Institute* 1965;34:297-305.

RIVM Risk assessment for humans cleaning the oil spillage and cleaning the birds on the coast of Brittany (France) following the wreckage of the Maltese oil tanker ERIKA in December 1999, Rapport RIVM, mars 2000, 12 p.

Schmähl D., Schmidt K.G., Habs M. Syncarcinogenic action of polycyclic hydrocarbons in automobile exhaust gas condensates. In Air Pollution and Cancer in Man (Mohr V., Schmahl D., Tomatis L. Eds), *IARC Scientific Publication* n°16, WHO, Lyon, France. 1977;16:53-59.

United States Environmental Protection Agency, Dermal Exposure Assessment: Principles and Application. Interim Report. Office of health and environmental assessment, January, 1992; EPA/600/8-91/011/B.

United States Environmental Protection Agency, Federal Register 1996;61(79):17-960.

VanRooij J.G.M, Bodelier-Bade M.M., Jongeneelen F.J. Estimation of individual dermal and respiratory uptake of polycyclic aromatic hydrocarbons in 12 coke oven workers, *British Journal of Industrial Medecine*. 1993;50:623-632.

Wester R.C., Maibach H.I., Bucks D.A.W., Sedik L., Melendres J., Liao C., Dizio S. Percutaneous absoprtion of [14C] DDTand [14C]benzo(a)pyrene from soil. *Fundamental and applied toxicology*. 1990;15:510-516.

Yang J.J., Roy T.A., Krueger A.J., Neil W., Mackerer C.R. In vitro and in vivo percutaneous absorption of benzo(a)pyrene from petroleum crude - Fortified soil in the rat, *Bulletin* of *Environmental of Contamination Toxicology* 1989;43:207-214.

ANNEXE 1

Fiche descriptive d'une plage ou d'un site de baignade

(les données fournies sont nécessairement approximatives)

| Ide | entification du site |
|-----|--|
| | Code NUTS (5 dernières lettres) : I_I_I_I_I ou |
| Dé | pt.: I_I_I Commune: Nom du site: |
| De | scription du site |
| • | Etendue linéaire du haut de plage (en km) : I_I_I |
| • | Composition de la plage <i>en</i> % de surface sable : I_I_I galets : I_I_I rochers : I_I_I |
| • | Présence de structure d'accueil pour les enfants (style clubs Mickey, école de voile) I_I 1=oui, 2 = non |
| Am | pleur de la pollution |
| • | La plage a-t-elle été touchée : I_I (1= faiblement, 2 = moyennement, 3 = fortement) |
| • | Des plaques continuent-elles d'arriver ? I_I (1=oui, 2 = non) |
| Ne | ttoyages des plages |
| • | Le nettoyage du site est-il terminé ? Sinon, à quelle date (avant le 15 avril) le sera-t-il ? I_I (1=oui, 2 = non) //_ |
| • | Une inspection visuelle du site a-t-elle été réalisée ? I_I (1=oui, 2 = non) Si oui, a-t-elle donné des résultats satisfaisants ? I_I (1=oui, 2 = non) |
| Do | nnées environnementales |
| • | Des mesures environnementales ont elles été effectuées et sont elles accessibles ? |
| | dans l'eau $I_{-}I$ (1=oui, 2 = non) dans l'air $I_{-}I$ (1=oui, 2 = non) dans le sable $I_{-}I$ (1=oui, 2 = non) |
| | Contact en cas de mesures environnementales (nom, tel, adresse): |

Analyses des HAP dans les milieux.

- pour les échantillon d'eau de mer: extraction liquide / liquide au cyclohexane d'environ un litre d'échantillon; séchage, et concentration de l'extrait organique obtenu jusqu'à environ 1 ml; puis analyse par chromatographie en phase liquide (HPLC) de phase inversée avec gradient d'élution et détection par fluorescence et, pour l'acénaphtylène, non détectable par fluorescence par absorption UV à 254 nm.
- pour les échantillons de sable : séchage de l'échantillon au minimum 24 heures à 30°C à l'abri de la lumière ; extraction de 50 g d'échantillon sec à haute température, haute pression (ASE DIONEX) avec le dichlorométhane ; phase de concentration de l'extrait puis analyse par chromatographie en phase liquide (HPLC), détection par fluorescence et absorption UV à 254 nm pour l'acénaphtylène.
- . pour les rochers : extraction des tissus de lavage au soxlhet par un mélange hexane/acétone (50:50 v/v) pendant 16 heures à reflux ; concentration de l'extrait si nécessaire ; analyse par couplage chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG/SM).
- . pour les galets : extraction d'environ 7 à 10 galets par le dichlorométhane aux ultra-sons ; concentration de l'extrait et analyse par chromatographie en phase liquide (HPLC) couplée à une détection par fluorescence et UV à 254 nm pour l'acénaphtylène.
- . pour les échantillons de fioul récupérés lors de la première campagne (trois échantillons au total) : dilution de l'échantillon par le dichlorométhane ; analyse par couplage CG/SM.

Nota: dans certains cas (cas des fiouls et d'un sable particulièrement pollué), nous avons étudié plus précisément la composition globale de l'extrait analysé par couplage CG/SM, pour estimer les polluants présents autres que les 16 HAP de l'EPA.

Essais de volatilisation des HAP en laboratoire

- pour le fioul: introduction et étalement d'une quantité connue et surface connue de l'échantillon dans une enceinte, chauffage de l'échantillon et balayage de la surface par un flux connu de gaz pendant une durée contrôlée, piégeage des vapeurs de composés lourds (HAP principalement) dans des barboteurs d'isooctane (deux en série contenant environ 60 ml), piégeage des vapeurs de composés volatils sur des supports charbon actif à deux zones (400/200mg)
- pour le sable pollué: introduction d'une masse connue de l'échantillon dans une colonne de verre, chauffage de l'échantillon et balayage de la colonne par un flux connu de gaz pendant une durée contrôlée, piégeage des vapeurs de composés lourds (HAP principalement) dans des barboteurs d'isooctane (deux en série contenant environ 60 ml), piégeage des vapeurs de composés volatils sur des supports charbon actif à deux zones (400/200mg).
- puis *pour les deux cas*, concentration de la phase isooctane jusqu'à un volume de 1,5 ml environ et analyse par chromatographie liquide (HPLC/fluorescence) et désorption de chaque zone distincte des supports charbon actif par voie chimique (sulfure de carbone).

Les analyses des HAP (16 de la liste EPA) sont effectuées par HPLC/fluorescence et UV sur les extraits isooctaniques ; la quantification des autres composés présents (extraits isooctaniques et désorbats des supports charbon actif) étant opérée par couplage CG/SM.

Paramètres d'exposition

| Paramètres | Symbole | Adulte | Enfant |
|--|------------------|--|-------------------------------------|
| Poids (kg) | Р | 65 | 16 |
| Nombre de jours d'exposition (j) | NJ | 21 (vacancier) 60 (professionnel) | 21 ou 60 |
| Nombre d'années d'exposition (an) | NA | hypothèse 1 : 1 hypothèse 2 : 10 | hypothèse 1 : 1 hypothèse 2 : 10 |
| Surface corporelle totale (m ²) | A_{t} | 1,82 | 0,656 |
| Surface des mains (m ²) | A_{m} | 0,079 | |
| Surface des pieds (m ²) | A_p | 0,105 | |
| Quantité de sable ingéré (kg/j) | Q_s | 0 | 10 ⁻⁴ |
| Quantité d'eau ingérée (l/j) | Q_{e} | 0,1 | 0,05 |
| Volume de la boulette de fioul ingéré (m³) | V_b | | 10 ⁻⁶ |
| Pourcentage volumique de fioul dans la boulette | f | | 80% |
| Masse de sable adhérant à la peau (kg/m²) | Q _{s,p} | 0,28 | 0,28 |
| Epaisseur de la couche de fioul adhérant sur la plante des pieds et des mains (mm) | е | 1 | 1 |
| Durée du contact du sable avec la peau (h/j) | Ts | 6 (vacancier) 8 (professionnel) | 6 |
| Durée de contact du fioul sur la plante des pieds et des mains (h/j) | Tf | 6 (vacancier) 1 (professionnel) | 6 |
| Nombre de bains par jour | - | 2 | 2 |
| Durée du bain de mer (h/j) | Te | 1 (vacancier et professionnel) 3 (activités nautiques) | 1 |

Annexe 5

Paramètres physico-chimiques et biologiques des 16 HAP

| | Naph | Ace | Acy | Flu | Phen | Anth | Fluort | Pyr | Chrys | BaA | BbF | BkF | BaP | DahA | BghP | IcdP |
|--------------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|------|--------|-------|-------|------|------|------|------|------|------|------|
| М | 128 | 154 | | 166 | 178 | 178 | 202 | 202 | 228 | 228 | 252 | 252 | 252 | 278 | 276 | 276 |
| Kow | 3,4 | 4,0 | | 4,2 | 4,6 | 4,5 | 5,2 | 4,9 | 5,6 | 5,6 | 6,1 | 6,1 | 6,0 | 6,8 | 6,5 | 6,5 |
| t _{df} | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| t _{ds} | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 | 1 |
| t _{cs} , _e (6 h) | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 | 0,04 |
| t _{cs} , _e (8 h) | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 | 0,05 |
| t _{cf} , _e (6 h) | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 | 0,16 |
| t _{cf} , _e (1 h) | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 | 0,03 |
| t _t | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 | 0,25 |
| t _{oral} | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 | 0,4 |
| FET | 0,001 | 0,001 | 0,001 | 0,001 | 0,001 | 0,01 | 0,001 | 0,001 | 0,001 | 0,1 | 0,1 | 0,1 | 1 | 5 | 0,01 | 0,1 |

M : masse molaire de la molécule

Kow : coefficient de partage octanol-eau de la molécule

Masse volumique du mélange fioul ρ: 1000 kg/m³

 t_{df} : taux de biodisponibilité du polluant dans le mélange fioul par voie orale

 t_{ds} : taux de biodisponibilité du polluant sur la matrice sable par voie orale

 $t_{cs,e}$: taux d'absorption cutanée à partir de la matrice sable $t_{cf.e}$: taux d'absorption cutanée à partir du mélange fioul

t _{oral}: taux d'absorption orale du polluant FET: Facteur d'Equivalent Toxique

Estimation des taux d'absorption cutanée

Données de la littérature scientifique disponibles

Les données expérimentales concernant le taux d'absorption des hydrocarbures aromatiques polycycliques sont peu nombreuses et présentent des valeurs dispersées.

Wester et al. (1990) ont réalisé des mesures des taux d'absorption du benzo(a)pyrène (BaP) in vitro à partir d'échantillons de peau humaine et in vivo sur le singe rhésus. En application sur la peau, le BaP en solution dans l'acétone présente, au bout de 24 heures de contact, un taux d'absorption de 51 % chez le singe rhésus. Pour l'essai in vitro sur peau humaine, 24,6% de la dose de BaP ont été absorbés au niveau de la peau mais seulement 0,09% de cette dose a traversé la barrière cutanée au bout de 24 heures.

Dans les mêmes conditions et pour la même quantité de BaP appliquée sur la peau à partir d'une matrice sol, les pourcentages d'absorption sont de 13,2% chez le singe rhésus et de 1,41% sur peau humaine. Dans ce cas, 0,01% de la dose appliquée a effectivement traversé la barrière cutanée.

A partir des quantités de HAP déposées sur la peau chez 12 travailleurs de cokerie pendant 8 heures, VanRooij et al. (1993) ont calculé grâce aux constantes d'absorption issues d'une étude précédente non publiée, le pourcentage de pyrène absorbé par la peau pendant 8 heures, soit de 20% environ.

taux d'absorption des polluants à partir de la matrice fioul : t cf.e

A partir de l'équation du taux d'absorption définie par VanRooij et en considérant une durée de contact avec le fioul de 6 heures, on obtient un taux d'absorption de 16%. Pour une heure de contact, la même équation donne un taux d'absorption de 2,8%.

• taux de transfert du polluant vers la peau à partir de la matrice sable : t_t

La présence d'une matrice de type sol ou sable réduit la disponibilité du polluant pour un passage du polluant vers la peau comme le démontrent les essais réalisés par Wester. A partir de leurs données et de celles de Yang et al. (1989) sur le rat, Wester et al. en déduisent une réduction de 75% de l'absorption cutanée du BaP à partir d'une matrice sol par rapport à du BaP en solution dans l'acétone ou d'un mélange de pétrole brut.

A partir de ces données, nous utilisons dans l'évaluation de risques, un taux de transfert t_t de 25% des HAP vers la peau à partir de la matrice sable.

• Définition du taux d'absorption de polluants à partir de la matrice sable : t cs,e

Compte tenu du taux d'absorption défini à partir de la matrice fioul et du taux de transfert des polluants vers la peau défini à partir de la matrice sable, nous prenons un taux d'absorption de 4% pour 6 heures de contact à partir de la matrice sable (16% X 0,25= 4%) et de 5% pour 8 heures de contact.

Méthode d'estimation des expositions

Estimation de la quantité de sable adhérant à la peau : Q_{s,p}

On fait l'hypothèse d'une monocouche de grains de sable adhérant à la peau.

Les sables présentent des grains de dimensions suivantes :

sable fin : diamètre de 20 à 200 µm. sable grossier : diamètre de 200 à 2 mm.

Soit un sable avec des grains d'un diamètre (d) de 200 μ m, le volume d'un grain est alors le suivant :

$$V = \frac{4}{3} \times \pi \times (\frac{d}{2})^3 = 4.2 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3$$

Sur un cm², 50 x 50 grains peuvent être alignés, soit un volume de :

$$4.2 \cdot 10^{-12} \times 50 \times 50 = 1.05 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 = 1.05 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^3$$

Si la masse volumique des grains est de 2 650 mg/cm³, la masse de la couche de grains déposée sur la peau est alors :

 $1,05 \cdot 10^{-2} \times 2650 = 28 \text{ mg par cm}^2 \text{ de surface de peau.}$

Ingestion d'une boulette de fioul

$$DIB = \frac{Q_b \times Cf}{P}$$

avec
$$Q_b = f \times V_b \times \rho$$

DIB : dose d'exposition par ingestion de sable (mg/kg/j)

P : poids de la cible (kg)

Cf : concentration de polluant dans le fioul (mg/kg)
Qb : masse de fioul ingérée à partir de la boulette (kg)

V_b: Volume de la boulette (m³)

ρ : masse volumique du fioul (kg/m³)

f : pourcentage volumique de fioul dans la boulette

Ingestion de sable

$$DIS = \frac{Qs \times Cs}{P}$$

DIS : dose d'exposition par ingestion de sable (mg/kg/j)

P : poids de la cible (kg)

Cs : concentration de polluant dans le sable (mg/kg)

Qs : quantité de sable ingéré (kg/j)

Ingestion d'eau de mer

$$DIE = \frac{Qe * Ce}{P}$$

DIE: dose d'exposition par ingestion d'eau (mg/kg/j)

Qe : quantité d'eau ingérée (l/j)

Ce : concentration dans l'eau de mer (mg/l)

P : poids de la cible (kg)

Contact cutané avec le sable

Calcul de la dose interne de polluant absorbé

Il s'agit ici du calcul de la dose de polluant ayant atteint la circulation sanguine

$$DCSI = \frac{\frac{A_t}{2} \times Q_{sp} \times t_{cs,e} \times Cs}{P}$$

DCSI : dose absorbée liée au contact avec le sable (mg/kg/j)

A_t : surface corporelle totale de la cible (m²) Q_{sp} : quantité de sable adhérant à la peau (kg/m²)

t_{cs.e} : taux d'absorption cutanée à partir de la matrice sable pour la durée de

contact considérée (-)

P : poids de la cible (kg)

Calcul de la dose appliquée responsable d'effets locaux

$$DCSA = \frac{\frac{A_t}{2} \times Q_{sp} \times t_t \times Cs}{P} \times \frac{Ts}{24}$$

DCSA : dose présente sur la peau liée à l'adhérence du sable sur la peau (mg/kg/j)

t_t : taux de transfert du polluant vers la peau à partir de la matrice sable : fraction de polluant accessible du fait de la matrice sable

Ts : durée de contact du sable avec la peau (h)

Contact cutané avec le fuel présent sur les rochers et les galets

Calcul de la dose interne de polluant absorbé

Il s'agit ici du calcul de la dose de polluant ayant atteint la circulation sanguine

$$DCFI = \frac{\frac{A_m + A_p}{2} \times e \times \rho \times C_r \times t_{cf,e}}{P}$$

DCFI : dose d'exposition liée au contact cutané avec le fioul (mg/kg/j)

A_m : surface des mains (m²) A_D : surface des pieds (m²)

e : épaisseur de la couche de fioul adhérant à la peau (m)

t cf,e : taux d'absorption cutanée à partir du mélange fioul pour la durée de contact

considérée (-)

C_r: Concentration de polluant dans le mélange fioul sur les rochers (mg/kg)

ρ : masse volumique du fioul (kg/m³)

P : poids de la cible (kg)

Calcul de la dose appliquée responsable d'effets locaux

$$DCFA = \frac{\frac{A_m + A_p}{2} \times e \times \rho \times C_r}{P} \times \frac{Tf}{24}$$

DCFA : dose présente sur la peau liée à l'adhérence du sable sur la peau (mg/kg/j)

Tf: durée de contact du fioul avec la peau (h)

Contact cutané avec l'eau de mer lors de la baignade

Calcul de la dose interne de polluant absorbé

Le calcul de la dose absorbée *DCEI* est réalisé à partir des équations du modèle recommandé par l'USEPA (USEPA, 92) pour l'estimation de l'absorption cutanée de polluant à partir d'eau contaminée (la dose calculée par le modèle est multipliée par deux car chacun des individus étudiés est supposé se baigner deux fois par jour).

Calcul de la dose responsable d'effets locaux

Dans le cas de la baignade, la peau de la cible est en présence d'une concentration de contaminants mais il n'y a pas de dose de polluants déposée sur la peau à proprement parler. Par conséquent pour estimer la dose appliquée qui peut-être responsable d'effets locaux suite à une exposition à de l'eau contaminée, un calcul d'extrapolation est réalisé. Il prend en compte la dose interne liée à l'exposition par la baignade et le taux d'absorption des polluants liée à l'exposition au mélange fioul de la manière suivante :

$$DCEA = \frac{DCEI}{\frac{t_{cf,e} \times Te}{Tf}} \times \frac{Te}{24}$$

DCEA : dose équivalente au contact de la peau liée à la baignade

Modalités de calculs des risques encourus

Les procédures de calcul sont propres à chaque type d'effet considéré (conséquences aiguës d'une ingestion d'une boulette de fioul, effet sur la reproduction, risque de cancer).

Calcul du risque aigu

Il est lié à l'ingestion accidentelle d'une boulette de fioul par la cible enfant une fois durant son séjour. Pour le polluant j, le risque est défini à partir de l'indice de risque suivant :

$$IR_{aigu,j} = \frac{DIBj \times t_{df}}{DJT_{aigu}, j}$$

IR_{aiqu,i}: indice de risque lié aux effets aigus du polluant j

 DJT_{aigu} : dose journalière tolérable correspondant aux effets aigus du polluant j t_{df}: taux de biodisponibilité du polluant dans le mélange fioul par voie orale

Calcul du risque tératogène

Le risque tératogène est lié aux effets tératogènes du benzo(a)pyrène par l'ensemble des voies d'exposition. Le risque est calculé à partir de la dose interne.

$$\begin{split} IR_{t\acute{e}ratog\grave{e}ne} &= \sum_{k}^{voies} \frac{D_{\text{int,}}k}{DJT_{t\acute{e}ratog\grave{e}ne}} \\ IR_{t\acute{e}ratog\grave{e}ne} &= \frac{1}{DJT_{t\acute{e}ratog\grave{e}ne}} \times (DIE \times t_{oral} + DCSI + DCFI + DCEI) \end{split}$$

IR_{tératogène} : indice de risque tératogène

k : indice correspondant représentant toutes les voies d'exposition DJT_{tératogène} : dose journalière tolérable pour les effets tératogènes du BaP

D_{int},k : dose interne liée à la voie d'exposition k

t oral : taux d'absorption oral du polluant

Calcul du risque de cancer par absorption de polluants

Le risque cancérigène par absorption de polluants est lié à l'ensemble des voies d'exposition et à l'ensemble des substances cancérigènes présentes. En l'absence d'un excès de risque unitaire disponible pour chaque molécule de HAP, le risque cancérigène est évalué à partir de l'excès de risque unitaire défini pour le benzo(a)pyrène et de facteurs d'équivalence toxique (Nisbet and Lagoy, 1992).

$$ERI = \frac{NA}{70} \times ERU_{BaP} \times \sum_{j}^{polluants} FETj \times (\sum_{k1}^{oral} DJEj, k1 + \frac{1}{t_{oral}, j} \times \sum_{k2}^{cu \tan \acute{e}} DJEj, k2)$$

$$ERI = \frac{NA}{70} \times ERU_{BaP} \times \sum_{j}^{polluants} FETj \times [(\frac{DIBj \times t_{df}}{365} + DISj \times t_{ds} \times F + DIEj \times F) + \frac{F}{t_{oral}, j} \times (DCSIj + DCFIj + DCEIj)]$$

$$avec F = \frac{NJ}{365}$$

ERI : excès de risque individuel de cancer par absorption de polluants ERU_{BaP} : excès de risque unitaire du benzo(a)pyrène par absorption (mg/kg/j)⁻¹

FET : facteur d'équivalence toxique

DJE : dose journalière d'exposition en moyenne sur la période d'exposition

considérée (mg/kg/j)

t oral : taux d'absorption oral du polluant

t_{df} : taux de biodisponibilité du polluant dans le mélange fioul par voie orale t_{ds} : taux de biodisponibilité du polluant sur la matrice sable par voie orale

NA : nombre d'années d'exposition (an)

F : fréquence d'exposition

NJ : nombre de jours d'exposition

70 : nombre d'années de vie (pris conventionnellement égal à 70 ans)

j : indice correspondant aux différents polluants présents
 k1 : indice représentant les voies d'exposition orales
 k2 : indice représentant les voies d'exposition cutanées

Calcul du risque de cancers locaux par contact cutané

Le risque cancérigène au niveau de la peau est lié aux voies d'exposition correspondant à un contact direct avec la peau et à l'ensemble des substances cancérigènes présentes. En l'absence d'un excès de risque unitaire disponible pour chaque molécule de HAP, le risque cancérigène est évalué à partir de l'excès de risque unitaire défini pour le benzo(a)pyrène et de facteurs d'équivalence toxique (Nisbet and Lagoy, 1992).

$$ERIc = \frac{NA}{70} \times ERU_{BaP} \times \sum_{i}^{polluants} FETj \times (\sum_{k}^{cu \tan e} DJEj, k)$$

$$ERIc = \frac{NA}{70} \times ERU_{BaP} \times F \times \sum_{j}^{polluants} FETj \times (DCSAj + DCEAj)]$$

ERIc : excès de risque individuel de cancer local de la peau

ERUc_{BaP}: excès de risque unitaire du benzo(a)pyrène par contact cutané (mg/kg/j)⁻¹

FET : facteur d'équivalence toxique

DJE : dose journalière d'exposition en moyenne sur la période d'exposition

considérée (mg/kg/j)

NA : nombre d'années d'exposition (an)

F : fréquence d'exposition

70 : nombre d'années de vie pris conventionnellement égal à 70 ans

j : indice correspondant aux différents polluants présents

k : indice représentant les voies d'exposition cutanées

Calcul du risque non cancérigène

Le risque non cancérigène est calculé comme la somme des indices de risque correspondant à l'ensemble des voies et des substances provoquant les mêmes effets sur le même organe cible par le même mécanisme d'action. L'indice de risque est le rapport entre la dose journalière d'exposition et la dose journalière tolérable.

Pour une substance donnée, le risque est calculé de la manière suivant :

$$IR = \frac{1}{DJT} \left(\sum_{k1}^{oral} DJE_{oral}, k1 + \sum_{k2}^{cu \tan \acute{e}} \frac{DJE_{cu \tan \acute{e}, k2}}{t_{oral}} \right)$$

$$IR = \frac{1}{DJT} \left[\left(\frac{DIB \times t_{df}}{365} + DIS \times t_{ds} \times F + DIE \times F \right) + \frac{F}{t_{oral}} \times (DCSI + DCFI + DCEI) \right]$$

IR : indice de risque

DJE : dose journalière d'exposition en moyenne sur la période d'exposition

considérée (mg/kg/j)

t oral : taux d'absorption oral du polluant

F : fréquence d'exposition

t_{ds} : taux de biodisponibilité du polluant sur la matrice sable par voie orale t_{df} : taux de biodisponibilité du polluant dans le mélange fioul par voie orale

Concentrations de HAP dans les différents milieux d'exposition des plages sélectionnées pour l'étude

| Plage | Eau | Eau | Eau | SableM | SableM | SableS | SableS | Rochers | Rochers |
|-------|---------------------|---------------------|--------------------|---------|--------|---------|--------|---------|----------|
| | Eq.BaP ¹ | 16 HAP ² | 6 HAP ³ | Eq. BaP | 16 HAP | Eq. BaP | 16 HAP | Eq.BaP | 16 HAP |
| | ng/l | ng/l | ng/l | μg/kg | μg/kg | μg/kg | μg/kg | μg/m² | μg/m² |
| 1 | 19,0 | 113,8 | <23,5 | 4,8 | 22 | | | 0,8 | 11,5 |
| 2 | 19,0 | 92,5 | <23,5 | 0,4 | 2,5 | | | 0,9 | 118,8 |
| 3 | 19,0 | 92,5 | <23,5 | 2,8 | 21,6 | | | 8,1 | 106,3 |
| 4 | 19,0 | 98,9 | <23,5 | 0,3 | 2,7 | 0,4 | 3,2 | | |
| 5 | 19,1 | 112,4 | 24,7 | 0,7 | 5,1 | 144,1 | 402,0 | 113,7 | 275,3 |
| 6 | 27,9 | 168,4 | 57,1 | 0,4 | 2,8 | 0,5 | 26,3 | | |
| 7 | 53,3 | 329,1 | 153,3 | 2,7 | 13,4 | 2,9 | 13,0 | | |
| 8 | 19,1 | 119,9 | 25,3 | 0,4 | 1,9 | 3,5 | 18,3 | | |
| 9 | 19,1 | 107,2 | 24 | 0,6 | 4,3 | | | | |
| 11 | 21,1 | 118,2 | 26,5 | 13,2 | 94,9 | 2,5 | 17,0 | 19,3 | 48 |
| 12 | 19,0 | 42,7 | 33,3 | 0,7 | 5,2 | 0,7 | 4,4 | 12,9 | 34,1 |
| 13 | 32,3 | 202,2 | 36,4 | 0,4 | 2,2 | 2,2 | 5,4 | | |
| 14 | 19,0 | 130,8 | <23,5 | | | 0,4 | 3,8 | 4,2 | 17,5 |
| 15 | 24,2 | 134,0 | 48,3 | 3,0 | 19,5 | 16,3 | 86,6 | 12,9 | 32 |
| 16 | 21,8 | 136,1 | 38,9 | 122,2 | 952,3 | 41,8 | 244,0 | | |
| 17 | 62,2 | 363,8 | 101,1 | | | 0,4 | 4,8 | 19,3 | < 69,6 |
| 18 | 31,7 | 175,9 | 62,7 | 5,7 | 27,0 | 14,5 | 61,9 | 12262,8 | 52209 |
| 19 | 19,0 | 92,8 | <23,5 | 4,3 | 25,2 | 0,5 | 2,6 | 22149,6 | 124494,3 |
| 20 | 53,2 | 298,6 | 103,7 | 0,6 | 2,9 | 0,9 | 4,2 | 31544,3 | 119638,1 |
| 21 | 51,2 | 414,1 | 131,6 | 2,1 | 11,1 | 12,1 | 77,1 | 6235,0 | 6235 |
| 22 | 49,0 | 325,9 | 148,1 | 1,0 | 4,8 | 1,3 | 6,2 | 520,1 | 2346,6 |
| 23 | 27,5 | 125,6 | 37,7 | 0,5 | 3,4 | 0,6 | 3,3 | | |
| 24 | 24,4 | 149,7 | 41,1 | 4,6 | 27,2 | 1,9 | 14,7 | 128,7 | < 320 |
| 25 | 28,6 | 303,1 | 59,2 | 1,4 | 10,8 | 8,1 | 66,7 | 11289,3 | 68308 |

¹concentration en equivalent BaP des 16 HAP de la liste EPA ²addition des concentrations des 16 HAP de la liste EPA

³addition des concentrations des 6 HAP retenus par l'OMS et le décret français 89/3

T = Témoin ; SableM = Sable Mouillé ; SableS = Sable Sec

Annexe 9 (suite)

Concentrations de HAP dans les différents milieux d'exposition des plages sélectionnées pour l'étude

| Plage | Eau | Eau | Eau | SableM | SableM | SableS | SableS | Rochers | Rochers |
|-------|---------------------|---------------------|--------------------|--------|--------|---------|--------|---------|---------|
| | Eq.BaP ¹ | 16 HAP ² | 6 HAP ³ | Eq.BaP | 16 HAP | Eq. BaP | 16 HAP | Eq.BaP | 16 HAP |
| | ng/l | ng/l | ng/l | μg/kg | μg/kg | μg/kg | μg/kg | μg/m² | μg/m² |
| 26 | 34,8 | 190,3 | 69,6 | 4,0 | 19,6 | 0,7 | 11,8 | | |
| 27 | 20,6 | 11,2 | 25,2 | 0,4 | 2,5 | 7,0 | 15,6 | | |
| 28 | 32,3 | 212,5 | 77,3 | 1,0 | 7,3 | 4,7 | 25,2 | | |
| 29 | 24,3 | 140,5 | 38,4 | 4,5 | 28,3 | 20,1 | 154,3 | 22,9 | 108,6 |
| 30 | 151,8 | 1338,1 | 394,9 | 2,1 | 12,4 | 3,4 | 24,5 | | |
| 31 | 46,7 | 376,2 | 118,3 | 0,9 | 4,6 | 28,2 | 172,6 | | |
| 32 | 21,9 | 115,4 | 34,3 | 3,6 | 12,8 | 0,5 | 2,7 | 51,2 | 952 |
| 35 | 25,3 | 136,0 | 29,4 | 1,8 | 8,8 | | | 10772,0 | 41167 |
| 36 | 19,0 | 125,9 | 35,7 | 4,0 | 44,5 | 2,4 | 22,3 | 1298,8 | 5427,4 |
| 37 | 19,0 | 125,2 | <23,5 | 1,4 | 11,3 | 1,4 | 8,9 | | |
| 38 | 19,1 | 137,0 | <23,5 | 0,4 | 2,2 | 0,8 | 5,1 | | |
| 40 | 19,0 | 155,2 | <23,5 | 1,1 | 7,5 | 3,1 | 17,5 | | |
| T1 | 19,9 | 102,7 | 33,7 | | | | | 0,1 | 2 |
| T2 | 19,0 | 92,5 | <23,5 | 8,6 | 38,1 | 0,8 | 9,3 | | |
| T3 | 19,0 | 89,5 | <23,5 | 1,6 | 23,2 | 0,8 | 7,7 | 0,1 | 0,7 |
| T4 | | | | | | 0,6 | 2,2 | | |
| T5 | | | | 0,9 | 5,9 | | | | |
| T6 | | | | 0,8 | 3,0 | | | | |
| T7 | 19,0 | 114,0 | <23,5 | | | 0,4 | 1,9 | | |

¹concentration en equivalent BaP des 16 HAP de la liste EPA ²addition des concentrations des 16 HAP de la liste EPA

³addition des concentrations des 6 HAP retenus par l'OMS et le décret français 89/3

T = Témoin ; SableM = Sable Mouillé ; SableS = Sable Sec

Quantification des émissions en laboratoire d'un sable et d'un fioul portés à une température de 45°C

A. Sable pollué

Emissions gazeuses à 45°C après balayage d'une masse connue (256 g) par un flux connu d'air (143 l) (principe lit fluidisé). L'émission dans ces conditions de balayage, est exprimée en ng/m³ pour un gramme de sable

| Composés | Emission | Seuil analytique |
|---|----------|------------------|
| Total 16 HAP liste EPA | 4,72 | < 4,0 |
| Naphtalène | <0,9 | <0,9 |
| Acénaphtylène | <0,5 | <0,5 |
| Acénaphtène | <0,2 | <0,2 |
| Fluorène | <0,09 | <0,09 |
| Phénanthrène | 0,79 | <0,2 |
| Anthracène | <0,1 | <0,1 |
| Fluoranthène | 0,20 | <0,1 |
| Pyrène | <0,7 | <0,7 |
| B(a)A | <0,1 | <0,1 |
| Chrysène | <0,1 | <0,1 |
| B(b)F | <0,2 | <0,2 |
| B(k)F | 0,05 | <0,02 |
| B(a)P | <0,09 | <0,09 |
| D(a,h)A | <0,1 | <0,1 |
| B(g,h,i)P | <0,1 | <0,1 |
| In(1,2,3,cd)P | <0,5 | <0,5 |
| Total hydrocarbures autres que les 16 HAP liste EPA | <170 | <170 |
| Paraffines | < 10 | < 10 |
| φ C4 | < 10 | < 10 |
| φ C5 | < 10 | < 10 |
| φ C6 | < 10 | < 10 |
| φ C7 | < 10 | < 10 |
| φ C8 | < 10 | < 10 |
| φ C9 | < 10 | < 10 |
| φοθ Naphtalène | < 10 | < 10 |
| Méthyl Naphtalène | < 10 | < 10 |
| Di Méthyl Naphtalène | < 10 | < 10 < 10 |
| Tri Méthyl Naphtalène | < 10 | < 10 |
| Acénaphtène | < 10 | < 10 |
| Autres HAP's | < 10 | < 10 < 10 |
| Méthyl Indane | < 10 | < 10 |
| Di Méthyl Indane | < 10 | < 10 |
| Tri Méthyl Indane | < 10 | < 10 |
| Tétra Méthyl Indane | < 10 | < 10 |

B. Etude sur un fioul pur

Emissions gazeuses à 45°C après lèchage d'une surface déterminée (0,0065 m²) de fioul par un flux connu d'air (333 l). L'émission, dans ces conditions de léchage, est exprimée en mg/m³ pour une surface de 1 m².

| Composés | Emission | Seuil analytique |
|---|----------|------------------|
| Total 16 HAP liste EPA | 34,6 | < 0,1 |
| Naphtalène | 21,7 | <0,01 |
| Acénaphtylène | 2,0 | <0,06 |
| Acénaphtène | 2,3 | <0,003 |
| Fluorène | 1,5 | <0,001 |
| Phénanthrène | 6,6 | <0,003 |
| Anthracène | 0,14 | <0,002 |
| Fluoranthène | 0,19 | <0,002 |
| Pyrène | 0,19 | <0,002 |
| B(a)A | <0,002 | <0,002 |
| Chrysène | <0,002 | <0,002 |
| B(b)F | <0,003 | <0,003 |
| B(k)F | 0,001 | 0,001 |
| B(a)P | <0,001 | <0,001 |
| D(a,h)A | <0,002 | <0,002 |
| B(g,h,i)P | <0,002 | <0,002 |
| In(1,2,3,cd)P | <0,006 | <0,006 |
| Total Hydrocarbures autres que les IGHAP EPA | 1713 | <4,2 |
| Alkyl benzène en C3 (φ C3) | 31 | <0,3 |
| Alkyl benzène en C4 (φ C4) | 108 | <0,3 |
| Alkyl benzène en C5 (φ C5) | 170 | <0,3 |
| Alkyl benzène en C6 (φ C6) | 138 | <0,3 |
| Alkyl benzène en C7 (φ C7) | 61 | <0,3 |
| Alkyl benzène en C8 (φ C8) | 31 | <0,3 |
| Alkyl benzène en C9 (φ C9) | 9 | <0,3 |
| Sous total φ C3 à φ C9 | 543 | < 2,1 |
| Somme Méthyl Naphtalènes | 54 | <0,3 |
| Somme Di Méthyl Naphtalènes | 77 | <0,3 |
| Somme Tri Méthyl Naphtalènes | 31 | <0,3 |
| Sous-total mono, di, | 162 | <0,9 |
| triméthylnaphtalène | - | , , |
| Méthyl Indane | 161 | <0,3 |
| Di Méthyl Indane | 325 | <0,3 |
| Tri Méthyl Indane | 315 | <0,3 |
| Tétra Méthyl Indane | 107 | <0,3 |
| Total di, tri et tétra méthylindane | 908 | < 1,2 |