

Contribution à l'évaluation de l'exposition d'enfants franciliens aux pesticides dans l'environnement intérieur

Cas particulier des insecticides organophosphorés Olivier Blanchard

L'expologie est le nom proposé¹ pour traduire le terme anglais « exposure assessment ». Un article récent de Wallace LA., un des « pères fondateurs » de l'expologie, tire le bilan des implications de ce concept [6]. Pour l'auteur, cette nouvelle discipline scientifique est apparue, il y a 20 ans, dans le but d'évaluer l'exposition humaine aux polluants environnementaux. Le principe fondamental de cette nouvelle science est de « mesurer là où sont les personnes ». Un premier principe a été le développement de dispositifs de prélèvements petits, légers et silencieux. Un second principe a été de mesurer la charge corporelle, pour déterminer la relation entre l'exposition et la dose. Le développement de ces outils a mis en évidence que les sources de pollution étaient disséminées, proches des personnes et échappant à toute réglementation. Ce constat a remis en cause la vision que l'on pouvait avoir dans les années 1970, à savoir une pollution d'origine industrielle provenant des cheminées d'usine et se répandant dans les milieux environnants.

Le biomonitoring humain (BMH), ou biosurveillance, est un outil d'identification, de contrôle et de prévention de l'exposition des populations aux substances chimiques. Basé sur l'analyse de tissus ou liquides organiques, il permet d'évaluer l'exposition humaine aux polluants environnementaux et leurs effets sur la santé. Aux États-Unis, depuis deux à trois décennies, de larges programmes nationaux de biomonitoring (NHANES², NHEXAS³, NHATS⁴, etc.) sont développés pour suivre l'évolution de l'exposition de la population américaine à certains métaux lourds, composés organiques persistants ou pesticides organochlorés/organophosphorés, par

exemple. En Europe, le recours au BMH, seule approche permettant une mesure intégrée d'une exposition multisource et multivoie, reste plus marginal. Seule l'Allemagne propose depuis le milieu des années 1980 un suivi de l'exposition de sa population par biomonitoring. Toutefois, d'importants efforts ont été engagés, ces dernières années, par l'Union européenne notamment avec le Plan d'Action Environnement-Santé 2004-2010 et la stratégie SCALE⁵ lancés par la Commission européenne. La Commission vise, dans l'une de ses actions, à définir une approche cohérente de la biosurveillance en Europe. En France, en relation avec les réflexions européennes menées dans le cadre de l'initiative communautaire SCALE, l'action 37 du PNSE⁶ vise à « étudier les modalités d'utilisation des indicateurs biologiques d'exposition en milieu professionnel et en population générale ». Parallèlement à ces programmes nationaux ou internationaux, la publication d'un nombre de plus en plus important d'études ayant recours à l'utilisation de biomarqueurs (d'exposition, d'effet ou de susceptibilité) témoigne également de l'intérêt croissant de cette approche pour mieux caractériser l'exposition des populations à l'échelle nationale, régionale ou locale. Les substances recherchées sont variées, allant des métaux ou des dioxines, qui bénéficient de techniques de mesure relativement bien maîtrisées dans les milieux biologiques usuels, à des substances plus émergentes (phtalates, pesticides de la famille des pyréthrinoides, polybromodiphényléthers...) pour lesquelles des améliorations ou standardisations analytiques sont encore

NOTES

- 1 - Dictionnaire Robert Édition 2007.
- 2 - National Health and Nutrition Examination Survey: <http://www.cdc.gov/nchs/nhanes.htm>
- 3 - National Human Exposure Assessment Survey: <http://www.epa.gov/nerl/research/nhexas/nhexas.htm>
- 4 - National Human Adipose Tissue Survey
- 5 - Science Children Awareness Legislation Evaluation: http://ec.europa.eu/environment/health/pdf/com2004416_fr.pdf
- 6 - Plan National Santé-Environnement: <http://www.sante.gouv.fr/html/dossiers/pnse/rapport.pdf>
- 7 - DMP : diméthylphosphate.
- 8 - DMTP : diméthylthiophosphate.

nécessaires. Si le sang ou les urines restent les milieux biologiques les plus largement employés, des valeurs de référence y étant même aujourd'hui proposées pour la population générale, certains travaux testent le recours à des milieux alternatifs (air expiré, ongles, méconium...) pour mieux ou plus aisément caractériser l'exposition des populations.

LE PROJET EXPOPE

Réalisé à l'INERIS en collaboration avec la Faculté des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques de l'Université de Paris 5, le projet EXPOPE s'inscrit dans cette démarche d'expologie [2-5]. Son objectif est de contribuer à évaluer l'exposition non alimentaire d'enfants franciliens, à un certain nombre de pesticides. Les outils d'évaluation reposent sur des questionnaires, des prélèvements de résidus présents dans l'air intérieur, de résidus cutanés manuportés et des recueils d'urines pour doser les métabolites urinaires communs à de nombreux insecticides organophosphorés (OPs). Trente-huit composés d'action insecticide, herbicide ou fongicide ont été choisis, en fonction de leurs utilisations, de leur toxicité et de leur rémanence.

Les conditions de l'étude

L'étude a été menée chez 73 enfants vivant en pavillon et 57 enfants vivant en appartement, âgés de 6 à 7 ans, scolarisés en écoles élémentaires de trois zones d'Île-de-France. Les logements étaient répartis comme suit : 46 % dans Paris intra-muros et la petite couronne, 39 % dans l'Essonne, et 15 % dans le Val-d'Oise. Le logement était, selon les cas, une maison individuelle avec jardin (55 %), un appartement (41,5 %) ou un autre type d'habitat – maison de ville sans jardin, appartement en rez-de-jardin privatif – (3,5 %). La date de construction du logement était antérieure à 1955 dans 29 % des cas, comprise entre 1955 et 1969 (12 %) et postérieure à 1969 (54 %). Pour six logements, il n'a pas été possible de renseigner la période de construction. Un animal était présent dans 26 % des foyers, plus d'un animal dans 6 % et aucun

animal dans 68 %. Un chat ou un chien était présent dans 29 % des foyers. Concernant l'environnement du logement, 55,5 % des foyers possédaient un jardin privatif, 32 % bénéficiaient d'une cour intérieure, 24 % d'une cour paysagée, 95 % de jardins attenants ou d'espaces verts à proximité (à moins de 100 mètres du domicile) et 31,5 % des domiciles donnaient sur une rue plantée d'arbres. Durant l'année précédant l'enquête, 87 % des familles ont utilisé au moins un pesticide, le plus souvent un insecticide. Dans 94 % des foyers, au moins un produit de type pesticide a été retrouvé, dont au moins un insecticide dans 93 %, au moins un fongicide pour plantes dans 30 %, et au moins un herbicide dans 32 % des foyers. Les formes présentes au domicile étaient le plus souvent des bombes aérosols ou des sprays, suivies par les formulations liquides puis les plaquettes diffusives. Les autres formulations les plus fréquentes étaient les poudres, suivies des pièges fermés et des shampooings. La famille chimique d'insecticides la plus fréquente était celle des pyréthrinoides, présente dans 88,5 % des logements (en moyenne $3,2 \pm 2,1$ composés par foyer), suivie des OPs, dans 39 % des logements (en moyenne $0,7 \pm 0,8$ composé par foyer). Au moins un insecticide appartenant à une autre famille était retrouvé dans 41 % des foyers (carbamates 21,5 %, dont propoxur 15,5 %, fipronil 16 %, dicofol 15,5 %). Plus d'un quart des familles ont rapporté l'intervention d'un professionnel de la désinsectisation au domicile.

Les résultats

Au total, 130 prélèvements d'air, 129 prélèvements de résidus cutanés, 126 prélèvements d'urines et 65 prélèvements de poussières de sols ont été effectués. Les mesures ont montré que le lindane, l'alpha-HCH et le propoxur étaient les pesticides les plus fréquemment retrouvés dans l'air (dans respectivement 88 %, 49 % et 44 % des logements). Les niveaux d'OPs dans l'air et sur les mains étaient significativement corrélés, mais aucune corrélation n'a été retrouvée avec les niveaux de métabolites

urinaires. Les niveaux de propoxur dans l'air et sur les mains étaient également significativement corrélés. Le type de logement et son ancienneté sont des facteurs influençant les concentrations aériennes en lindane et en alpha-HCH. La présence d'un jardin ou d'une cour paysagée influence de façon significative les concentrations d'insecticides OPs dans l'air. La saison, le type de logement ainsi que la présence de plantes à l'intérieur du domicile sont significativement associés aux niveaux de résidus cutanés d'insecticides OPs. Soixante-dix pour cent des enfants (88 enfants sur 126) ont excrété au moins un des six métabolites urinaires des OPs (dialkylphosphates), la moyenne est de $1,6 \pm 1,4$ métabolites urinaires mesurés par échantillon d'urine. Le nombre de dialkylphosphates urinaires par enfant varie de zéro à cinq. Les métabolites méthyl (DMP⁷ et DMTP⁸ surtout) sont plus fréquents que les métabolites éthyl : 65 % des enfants excrètent au moins un métabolite méthyl et seulement 30 % un métabolite éthyl. Le DMP est le métabolite le plus fréquemment mesuré, mais les concentrations les plus élevées sont observées avec le DMTP et dépassent $1,6 \mu\text{mol/g}$ créatinine. Le traitement anti-termite est significativement associé à des niveaux plus élevés de dialkylphosphates urinaires. Enfin, le fait d'habiter une maison est associé à des concentrations plus importantes en isopropoxyphénol urinaire (marqueur spécifique de l'exposition au propoxur). En conclusion, l'étude a permis de mettre en évidence l'exposition d'enfants franciliens, dont les parents ne sont pas professionnellement exposés, à des pesticides variés et dont certains sont interdits depuis plusieurs années. Les niveaux observés sont globalement du même ordre de grandeur que ceux des études menées antérieurement, aux États-Unis pour la plupart. Toutefois, les composés les plus fréquents diffèrent sensiblement. Le lindane, le propoxur, le diazinon et le dichlorvos sont les composés pour lesquels une évaluation plus approfondie des expositions dans la population générale nous semble nécessaire.



SUMMARY

CONTRIBUTION TO THE ASSESSMENT OF EXPOSURE TO INDOOR PESTICIDES IN FRANCE

Pesticides are widely used for agricultural, industrial and residential purposes. This causes concern for animals, humans and ecosystems. The non-dietary exposure of populations has not been well studied, especially in France. In this context, we focused on indoor environment and cutaneous contamination by selected pesticides and tried to determine the internal exposure to some organophosphorus (OP) insecticides. This work was conducted in three phases.

First, we selected and developed the measurements and questionnaires to perform the study. A series of questionnaires were created, gathering sociodemographic information, data on the environment of the houses studied and on lifestyles and probable sources of pesticide exposure (pesticide use habits, description of the products used) of the subjects. Selected measurements were indoor air measurement, cutaneous residues assessed by means of hand wipes and urinary dialkylphosphates, metabolites common to numerous OP insecticides. Analytical methods (gas and high performance liquid chromatography combined with selective detectors) were chosen, adapted and validated in collaboration with the INERIS laboratories. A selection of various insecticides, herbicides and fungicides was made, according to their use, their toxicity and their remanence.

The second phase was the application of this protocol to an adult population (n=41) occupationally exposed or non-occupationally exposed to pesticides. Measurements were taken at the workplace of gardeners, florists and veterinary workers and at home for non-occupationally exposed subjects. OPs, organochlorine and propoxur insecticides, as well as some herbicides and fungicides, were detected in the air of every type of premises and on the hands of every group of subjects. In our sample, gardeners and florists were mostly exposed to methyl-OPs, and veterinary workers to ethyl-OPs. The general population was exposed to the same pesticides, but at somewhat lower levels. Urinary metabolites of OP insecticides did not significantly differ between the different exposed groups. This work allowed us to assess the feasibility of our study design.

The third part of this work consisted in studying the non-dietary exposure to pesticides of children aged 6-7 years, attending school in three predetermined areas in the Ile-de-France region. Our hypothesis was that the type of housing and housing environment could influence children's exposure to pesticides. We recruited 73 children living in houses and 57 living in apartments. In addition to the measurements already described, house dust was also sampled for approximately 50% of the households. A garden, a cat and/or a dog were present in 55.5% and 29% of the households, respectively. At least one pesticide product was present in 94% of the homes, mostly insecticides. During the year preceding the study, 87% of the parents reported the use of at least one pesticide product, mostly insecticide (average quantity of 2.5 products used). More than 25% of the parents mentioned at least one professional pest-control operation at home. Lindane, alpha-HCH and propoxur were the most frequently detected compounds in indoor air (in 88%, 49%, and 44% of the samples, respectively). Due to the great number of non quantifiable values, non parametric statistics were performed. Air and hand OP levels were significantly correlated, whereas no correlation was observed with urinary DAP levels. Propoxur levels in air and on hands were also significantly correlated. The sampling season, type of housing and ventilation were predictors of lindane and alpha-HCH air concentrations. Ventilation, use of insecticides against head lice and the presence of a garden were significantly associated with air concentrations of OP insecticides. The sampling season, type of housing and plants inside the home were associated with levels of hand OP contamination of the children. Termiticide treatment, the presence of a cat or a dog and use of insecticide against head lice for the child studied significantly influenced urinary dialkylphosphate concentrations. To conclude, the study design and the measurements we chose allowed us to describe non-dietary exposure to various urban populations in the Ile-de-France region. The factors that seem to influence this exposure suggest new orientations for future studies, to better define which subjects are overexposed.

RÉFÉRENCES

- [1] Blanchard O. (2006). «Exposition de la population générale aux pesticides présents dans l'environnement intérieur». *Pollution Atmosphérique*, n° 191, juillet - septembre 2006.
- [2] Bouvier G., Blanchard O., Momas I., Seta N. (2005). "Contribution to the assessment of the exposure to indoor pesticides in France". *Pollution Atmosphérique*, numéro spécial - Décembre 2005.
- [3] Bouvier G., Blanchard O., Momas I., Seta N. (2006). "Environmental and biological monitoring of exposure to organophosphorus pesticides: Application to occupationally and non-occupationally exposed adult populations". *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, vol. 16, pp. 417- 426.
- [4] Bouvier G., Blanchard O., Momas I., Seta N. (2006). "Pesticide exposure of non-occupationally exposed subjects compared to some occupational exposure: A French pilot study." *Science of the Total Environment*, Part B, 8, pp. 74-91.
- [5] Bouvier G., Seta N., Vigouroux-Villard A., Blanchard O., Momas I. (2005). "Insecticide urinary metabolites in nonoccupationally exposed populations". *Journal of Toxicology and Environment Health*, Part B, 8, pp. 485-512.
- [6] Wallace LA. (2001). "Human exposure to volatile organic pollutants: Implications for Indoor Air Studies". *Annual Review of Energy and the Environment*, 26, pp. 269-301.