

Exposition de la population aux pesticides dans la région Nord – Pas-de-Calais : apports du programme PHYTO AIR

05
5

Hélène PROUVOST
Christophe DECLERCQ



Exposition de la population aux pesticides dans la région Nord - Pas-de-Calais : apports du programme PHYTO AIR

Hélène PROUVOST¹
Christophe DECLERCQ¹

¹ Chargé(e) d'études, ORS Nord - Pas-de-Calais, Lille

Ce travail a été réalisé avec le soutien du Conseil Régional Nord - Pas-de-Calais et de l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie, dans le cadre du Fonds Régional d'Aide à la Maîtrise de l'Energie et de l'Environnement (FRAMEE) et du Programme Régional d'Action en Santé Environnement (PRASE).

Nous remercions pour leur aide Tiphaine Delaunay (ATMO Nord - Pas-de-Calais), Fabien Lecocq, Catherine Margas, Philippe Lacoste, Daniel Marzin (Institut Pasteur de Lille), Daniel Ludwikovski, Frédéric Le Louedec (DRASS Nord - Pas-de-Calais), Karine Petit (FREDON) et le Comité de Pilotage du projet PHYTO AIR.

Sommaire

1 Pesticides et santé publique : une question complexe	9
1.1 Quelques précisions sur les pesticides	9
1.2 Impact sanitaire des pesticides : les données de l'épidémiologie	9
1.2.1 Toxicité aiguë	9
1.2.2 Toxicité chronique	10
1.3 Une exposition difficile à estimer	11
1.4 Concentrations de pesticides dans les différents milieux : données disponibles dans la région Nord - Pas-de-Calais	11
1.4.1 L'eau	11
1.4.2 L'alimentation	12
1.4.3 Les eaux de pluie	13
1.4.4 L'air	13
2 Le programme <i>PHYTO AIR</i> et ses résultats	15
2.1 Contexte	15
2.2 Méthodes	15
2.2.1 Substances recherchées	15
2.2.2 Sites de prélèvement	15
2.2.3 Méthodes de prélèvement et d'analyse	16
2.3 Résultats	16
2.4 Discussion	17
3 Caractérisation de l'impact sanitaire des pesticides présents dans l'atmosphère : étude de faisabilité	45
3.1 Objectifs	45
3.2 Méthodes	45
3.2.1 Apports par les différentes voies d'exposition : la contribution de l'air	45
3.2.2 Comparaison des concentrations dans l'air aux VTR	46
3.2.3 Transposition des voies d'exposition pour les VTR	47
3.3 Résultats	48
3.3.1 Apports des différentes voies	48
3.3.2 Recherche des VTR	48
3.3.3 Comparaison avec les VTR	48
3.4 Discussion	48
4 Synthèse et recommandations	65
Références	67
Liste des tableaux	71
Table des figures	73

L'Institut Pasteur de Lille et ATMO Nord - Pas-de-Calais ont réalisé une campagne de mesures de pesticides dans l'air de mars 2003 à mars 2005, dans le cadre du programme *PHYTO AIR*. L'objectif de cette campagne réalisée avec le soutien du Conseil Régional Nord - Pas-de-Calais et de l'ADEME, était de détecter la présence de 99 molécules dans l'atmosphère de 3 sites de la région Nord - Pas-de-Calais et de suivre l'évolution des concentrations.

Le Conseil Régional et l'ADEME ont demandé à l'ORS Nord - Pas-de-Calais de les aider à apprécier dans quelle mesure les résultats de ce programme pouvaient être utilisés pour contribuer à évaluer l'exposition de la population à ces produits et les conséquences sanitaires de cette exposition.

Le présent rapport vise à apporter des éléments de réponse à ces interrogations. Après un bref rappel sur les pesticides et leur impact sanitaire, nous avons discuté de l'évaluation de l'exposition de la population générale aux pesticides et nous avons présenté une synthèse des résultats du programme *PHYTO AIR*. Nous avons ensuite examiné ces résultats au regard des données disponibles sur les autres compartiments de l'environnement, puis nous avons envisagé la possibilité d'appliquer les méthodes de l'évaluation des risques à ces résultats. Enfin, les limites de l'exercice réalisé nous ont conduits à émettre des recommandations, dont l'application devrait permettre de mieux apprécier l'exposition humaine aux pesticides et leur impact sanitaire dans la région Nord - Pas-de-Calais.

1 Pesticides et santé publique : une question complexe

1.1 Quelques précisions sur les pesticides

Le terme de pesticide désigne de manière générique l'ensemble des produits destinés à lutter contre les parasites animaux et végétaux. Cet anglicisme, issu des mots latin *pestis* (épidémie, fléau) et *cædere* (tuer), souligne l'intention de lutter contre les nuisances d'origine biologique [1], que ce soit dans le secteur agricole ou dans d'autres applications. Parmi les pesticides, on distingue :

- les produits phytopharmaceutiques, qui sont les substances actives et les préparations contenant une ou plusieurs substances actives, qui sont présentées sous la forme dans laquelle elles sont livrées à l'utilisateur et qui sont destinées à [2] :
 - protéger les végétaux ou les produits végétaux contre tous les organismes nuisibles ou à prévenir leur action ;
 - exercer une action sur les processus vitaux pour autant qu'il ne s'agisse pas de substances nutritives (par exemple, les régulateurs de croissance) ;
 - assurer la conservation des produits végétaux ;
 - détruire les végétaux indésirables ou détruire des parties de végétaux, freiner ou prévenir une croissance indésirable des végétaux.
- les produits biocides (anciennement appelé pesticides à usage non agricole), qui sont les substances actives et les préparations contenant une ou plusieurs substances actives, qui sont présentées sous la forme dans laquelle elles sont livrées à l'utilisateur, et qui sont destinées à détruire, repousser ou rendre inoffensifs les organismes nuisibles, à en prévenir l'action ou à les combattre de toute autre manière, par une action chimique ou biologique [3].

Les produits biocides incluent les produits qui ne sont pas destinés à la protection des cultures : insecticides ménagers, produits de protection du bois, produits antiparasitaires (anti-acariens, anti-puces), etc.

On peut classer les pesticides selon la nature du ravageur visé, on distingue alors [4] :

- les insecticides, qui comprennent aussi les acaricides et les aphicides ;
- les herbicides, qui détruisent les végétaux herbacés ou ligneux ;
- les fongicides, qui s'attaquent aux seuls champignons parasites des cultures ;
- les autres catégories, qui comprennent les nématoctides (contre les parasites des végétaux et des

animaux), les molluscides, les rodenticides, les taupicides, les corvifuges (contre les corbeaux) et les produits répulsifs.

Avec les progrès de la chimie organique, de nouveaux produits sont apparus, beaucoup plus performants que les substances inorganiques (soufre, arsenic, bouillie bordelaise. . .) ou végétales, mais aussi potentiellement plus dangereux pour l'environnement et la santé. L'usage de ces produits dans la lutte contre les parasites a connu un très fort développement au cours des décennies passées, tant dans l'environnement agricole pour la protection des cultures (usage phytosanitaire) que dans l'environnement urbain et domestique. Aujourd'hui, la France est l'un des principaux pays utilisateurs de pesticides en raison notamment des surfaces agricoles importantes (284 millions d'hectares). En 2004, d'après l'UIPP (Union des Industries de la Protection des Plantes), la vente de substances actives phytosanitaires était de 76 100 tonnes [5], utilisées à 90 % par l'agriculture. En 2005, 489 substances actives sont utilisées au travers de 7 000 spécialités commerciales autorisées, mais seulement 2 500 sont réellement distribuées. Malgré les progrès apportés dans la lutte contre certaines maladies et dans la production et la qualité des aliments, ces produits doivent être aussi considérés comme un danger potentiel pour l'homme et son environnement [6].

L'atmosphère est le premier milieu pollué lors du traitement par pulvérisation mais les pesticides se déposent en grande partie dans les autres milieux [7], dans les sols, dans l'eau, ce qui peut provoquer la contamination indirecte de la chaîne alimentaire, en particulier dans les fruits et les légumes, en plus de la contamination directe liée à l'usage agricole. La réglementation française prévoit des valeurs limites dans l'eau (décret 98-3 du 3 janvier 1989) et les aliments. Par contre, aucune valeur limite n'a été fixée pour les concentrations dans l'atmosphère, à l'exception du cas particulier de l'exposition professionnelle [8].

1.2 Impact sanitaire des pesticides : les données de l'épidémiologie

1.2.1 Toxicité aiguë

Les effets aigus survenant à doses importantes chez l'homme sont maintenant assez bien documentés (intoxications accidentelles ou volontaires). Le délai d'apparition varie en fonction de la toxicité intrinsèque du

produit utilisé, de la dose reçue, de la voie d'exposition et de la sensibilité de la personne. Les symptômes peuvent aller de la simple irritation à la mort. Les différents travaux sur les effets aigus des produits phytosanitaires retiennent principalement [9] :

- les brûlures chimiques au niveau des yeux ;
- les lésions cutanées ;
- les effets neurologiques ;
- les troubles hépatiques ;
- les troubles digestifs.

Les effets neurotoxiques constituent l'une des manifestations les plus fréquentes des intoxications aiguës aux pesticides [1].

1.2.2 Toxicité chronique

Depuis plus de 20 ans, les effets chroniques des pesticides ont été essentiellement étudiés dans les populations professionnellement exposées. En 1998, une revue de la littérature a fait le point sur l'état des connaissances épidémiologiques sur les effets des pesticides sur la santé [6]. Les effets retardés des pesticides peuvent se manifester soit à distance d'une exposition unique, généralement intense, soit à la suite d'une exposition chronique, de plus faible intensité mais répétées dans le temps [1].

Les troubles de la reproduction et du développement

Même si l'impact des pesticides reste difficile à confirmer, plusieurs travaux ont suggéré la possibilité d'un lien entre l'exposition aux pesticides et les risques de stérilité masculine, d'excès d'avortements spontanés, de prématurité, de morts-nés, de retard de croissance [10] et de certaines malformations fœtales telles que les fentes labiopalatines, la non fermeture du tube neural, des anomalies des membres et des tumeurs cérébrales et abdominales. Ces troubles ont été décrits comme associés à l'exposition paternelle ou maternelle aux pesticides [1, 6]. Une revue récente estime que tous les enfants conçus aujourd'hui dans l'hémisphère nord sont exposés aux pesticides, de la conception jusqu'à la gestation et l'allaitement [11]. L'auteur cite un certain nombre d'études dans lesquelles des traces d'herbicide (2,4-D, atrazine, metolachlore, alachlore) et d'insecticides (diazinon, chlorthane, DDE, heptachlore. . .) ont été mesurées dans le liquide séminal, le liquide folliculaire, le liquide amniotique, le sang maternel, le placenta, le sang au cordon, le lait maternel et le méconium. Ces observations ont été faites aussi bien en milieu rural qu'urbain, dans des pays tel que les Etats-Unis, le Canada, l'Inde, les Philippines, la Grèce, le Nicaragua.

Les atteintes neurologiques

Plusieurs études suggèrent que l'exposition professionnelle aux pesticides, principalement aux organochlorés ou aux organophosphorés, est associée à une diminution progressive des capacités neurocomportementales et à l'apparition de troubles neuropsychologiques [1]. L'étude Phytoner réalisée dans la population de viticulteurs de la région de Bordeaux a montré un effet à long terme des pesticides sur les fonctions cognitives [12]. Parmi les pathologies neurologiques, la maladie de Parkinson a fait l'objet de nombreux travaux épidémiologiques [13]. Les résultats de ces études ne sont pas toujours concordants et un lien entre exposition aux pesticides et maladie de Parkinson n'a pas pu être encore clairement identifié en raison notamment de la difficulté de retracer l'exposition à long terme aux pesticides et l'influence de facteurs individuels.

Les cancers

Les effets sanitaires des pesticides les plus étudiés et les plus médiatisés sont les cancers. Ils ont principalement été étudiés dans les populations agricoles. Un certain nombre de cancers spécifiques apparaissent plus fréquemment dans cette population que dans la population générale : cancers des tissus hématopoïétique et conjonctif, de la plèvre, de l'estomac de la prostate, de la peau et du cerveau. L'exposition aux pesticides constitue donc une hypothèse intéressante pour expliquer cette augmentation [6, 14, 15]. Plusieurs travaux permettent d'appuyer cette hypothèse, en particulier en ce qui concerne les hémopathies malignes, les myélomes multiples et les cancers du tissu conjonctif, mais leurs résultats restent discutés, en particulier en raison de la difficulté à reconstituer de manière retrospective l'exposition des populations étudiées. Des études se sont également intéressées aux cancers de l'enfant. L'exposition des enfants (lors de la grossesse ou pendant l'enfance, pouvant provenir du travail agricole des parents, ou de la contamination domestique de l'habitat ou de l'alimentation) est le plus souvent associée aux tumeurs cérébrales et aux leucémies [16, 17]. Par contre, l'impact sanitaire en population générale a été moins étudié et les résultats des études sont parfois contradictoires [6]. Parmi la liste des molécules étudiées dans la suite de ce travail seules deux, le chlorotalonil et l'heptachlore sont classés par l'IARC dans le groupe 2B : possible cancérigène pour l'homme [18].

La question des effets sanitaires des pesticides reste donc complexe à étudier en raison notamment des limites liées à la mesure de l'exposition, et les incertitudes sont importantes [6, 15]. Le Comité de la Prévention et de la Précaution a d'ailleurs recommandé en 2002 de développer la surveillance des pesticides dans les milieux et la chaîne alimentaire, de mesurer

l'exposition de la population, d'améliorer la connaissance de effets sanitaires des pesticides, en développant les études épidémiologiques, toxicologiques et biologiques et de renforcer la recherche sur le devenir des pesticides dans l'environnement [15].

1.3 Une exposition difficile à estimer

L'exposition aux pesticides n'est pas simple à mesurer, mais elle est indispensable pour pouvoir mesurer l'impact des pesticides sur la santé. Plusieurs méthodes existent, qui permettent de mesurer soit l'exposition d'un individu, soit l'exposition de la population dans son ensemble.

Parmi les méthodes de recueil de données individuelles, les questionnaires, plus faciles à mettre en œuvre, sont plus souvent utilisés pour estimer une exposition à moyen et long terme, mais manquent parfois de précision [19] voire sont assez rudimentaires. Par exemple la mesure de l'exposition des enfants aux pesticides est basée souvent sur la profession des parents, l'utilisation de pesticides dans l'activité professionnelle des parents, l'utilisation domestique de pesticides, la proximité d'une source d'émission, et pour les enfants d'agriculteurs, le type de culture et d'élevage [16]. Plus l'estimation de l'exposition est grossière, et moins le risque lié à l'exposition aux pesticides est détectable [16, 19].

La mesure quantitative de l'exposition aux pesticides s'appuie surtout sur des méthodes de mesure individuelles. La mesure de la concentration de pesticides dans les poussières intérieures [20, 21] reflète principalement une exposition cumulée aux pesticides persistants qui, à l'intérieur, ne sont pas dégradés par le rayonnement solaire et l'activité microbienne, alors que les capteurs portatifs avec pompes aspirantes vont permettre de mesurer l'exposition aux pesticides volatils rapidement dégradés [10, 19]. Par exemple, dans une étude sur l'impact sur le poids et la taille de naissance de l'exposition prénatale aux pesticides dans l'air ambiant, les futures mères ont porté pendant 2 jours consécutifs au cours de leur troisième trimestre de grossesse des capteurs portatifs [10]. Quelques études prennent en compte, dans cette exposition individuelle globale, les apports alimentaires en pesticides en appliquant la méthode des repas dupliqués [22]. Si ces méthodes sont plus précises et permettent parfois d'établir des relations dose-réponse, elles sont plus coûteuses et plus difficiles à réaliser dans de larges populations d'étude, et ne reflètent bien souvent que l'exposition récente, ce qui rend difficile l'étude de pathologies ayant un temps de latence important (les cancers par exemple) [16].

De la même façon, l'utilisation de marqueurs biologiques d'exposition aux pesticides dans le sang ou les urines présente les mêmes limites que les méthodes

de mesures individuelles. Ces méthodes ont cependant l'avantage de réduire les imprécisions liées aux biais de mémoires et le manque de précision sur la nature exacte des pesticides impliqués. Les marqueurs biologiques reflètent le plus souvent une exposition à très court terme à l'exception des marqueurs biologiques de l'exposition aux pesticides organochlorés persistants [23, 24].

Une autre stratégie consiste à reconstituer l'exposition d'une population donnée aux pesticides dans l'air. Les Systèmes d'Information Géographiques (SIG) sont de plus en plus utilisés, car ils permettent d'intégrer efficacement des informations sur l'utilisation de pesticides (localisation et quantité), des résultats de modèles de dispersion et de déposition des pesticides (dans l'air, sur le sols et dans les eaux superficielles et souterraines), et des données de population (lieu et durée d'exposition aux pesticides) [25]. Par exemple, dans l'Etat américain de Californie, l'application de pesticides est soumise à déclaration, incluant la date et la localisation de l'application. Ces données ont été utilisées dans plusieurs études pour reconstituer l'exposition à long terme de la population [25, 26] et sont parfois complétées avec des mesures directes de concentration de pesticides dans l'air ambiant [27]. Quand ces données n'existent pas, les photos satellites sont utilisées pour estimer les quantités et le type de pesticides utilisés en fonction des cultures de la surface des parcelles et des pratiques agricoles [28]. Ces démarches, peu coûteuses, ont l'avantage de pouvoir être appliquées sur de larges populations, mais, en France, les informations sur les applications de pesticides au niveau agricole et sur les quantités de pesticides vendus et utilisés dans l'agriculture et les autres domaines ne sont pas accessibles.

1.4 Concentrations de pesticides dans les différents milieux : données disponibles dans la région Nord - Pas-de-Calais

1.4.1 L'eau

La présence de pesticides dans l'eau résulte de l'activité humaine. Ils contaminent les eaux de surface (cours d'eau, lac. . .) par ruissellement et les eaux souterraines par infiltration. Dans les sols, des réactions chimiques ou biologiques peuvent transformer les substances actives en produits de dégradation parfois présents en quantités importantes [29]. Le Code de la Santé Publique fixe les dispositions réglementaires en matière d'eau potable, en application de la directive européenne 98/83/CE. Pour les pesticides dans l'eau au robinet du consommateur, les limites de qualité sont fixées à :

- 0,1 µg/L pour chaque pesticide à l'exception de l'aldrine, la dieldrine, l'heptachlore et l'heptachlo-

roépoxyde pour lesquels la valeur limite est fixée à 0,03 µg/L ;

- 0,5 µg/L pour le total des substances.

Cette valeur limite de 0,1 µg/L répond à une démarche générale de protection et repose sur l'idée que les éléments qui ne font pas partie de la composition naturelle de l'eau ne devraient pas y être retrouvés. Cette valeur n'a pas été élaborée dans une démarche d'évaluation de risques comme le fait l'OMS pour ses valeurs guide ; elle est donc plus sévère que ces dernières. Pour cela, cette valeur de 0,1 µg/L est souvent critiquée [4]. Par ailleurs, l'Agence Française de Sécurité Sanitaire des Aliments, dans son avis de décembre 2000, précise que l'usager doit être informé dès le dépassement des limites de qualité et que des consignes de restriction d'usage doivent être mises en œuvre :

- dès 0,4 µg/L pour les nourrissons et les femmes enceintes ;
- dès 0,6 µg/L pour les enfants ;
- dès 2 µg/L pour les adultes.

Un bilan national de la Direction Générale de la Santé sur les résultats du contrôle sanitaire des eaux mises en distribution a montré que les pesticides les plus souvent à l'origine de dépassements de la limite de 0,1 µg/L entre 2001 et 2003 étaient les triazines, avec notamment l'atrazine et ses métabolites de dégradation, la simazine, la terbuthylazine, le metolachlore, la chlordécone et le lindane, interdit d'utilisation depuis plusieurs années [30].

Les données disponibles dans la région Nord - Pas-de-Calais et relatives aux captages d'eau souterraine montrent la présence fréquente de pesticides (atrazine, produits de dégradation de l'atrazine, simazine, diuron et isoproturon). Des dépassements de la teneur maximale (0,1 µg/L) sont régulièrement constatés. Par contre, les dépassements de la teneur de 0,4 µg/L sont moins fréquents [29]. Dans un bilan des teneurs maximales de produits phytosanitaires observés dans les eaux distribuées entre 1998 et 2002, la DRASS Nord - Pas-de-Calais estime que 17,6 % de la population régionale a été concernée par des teneurs maximales observées comprises entre 0,1 et 0,4 µg/L et que 0,1 % de la population régionale a été concernée par des teneurs maximales observées supérieures à 0,4 µg/L.

1.4.2 L'alimentation

En France, c'est la Direction Générale de la Concurrence de la Consommation et de la Répression des Fraudes (DGCCRF) et la Direction Générale de l'Alimentation (DGAL) qui assurent les contrôles des végétaux commercialisés. Les résultats globaux montrent que, selon les années, 5 à 8 % des produits dépassent les normes des Limites Maximales de Résidus (LMR), souvent à cause de la rémanence de molécules dont l'usage a disparu [31]. Par contre, environ 50 %

des produits étudiés présentent des traces de pesticides. Ces résultats sont cohérents avec ceux observés dans une étude réalisée en 1994 sur la présence des pesticides dans l'alimentation humaine dans la région Midi-Pyrénées [32]. Récemment, le magazine *60 millions de Consommateurs* a rendu public les résultats d'une étude sur la teneur en pesticides dans certains fruits et légumes [33]. Si leurs résultats sont conformes aux tendances observées par la DGCCRF et la DGAL (très peu de dépassement des limites autorisées), leurs analyses mettent en évidence la présence de produits non autorisés ainsi que la présence de plusieurs résidus dans un même aliment (jusqu'à 8 dans un fruit). Le dernier bilan disponible de l'enquête de l'Union Européenne sur le contrôle des résidus de pesticides dans les produits d'origine végétale des pays de l'Union, ainsi que de la Norvège, de l'Islande et du Liechtenstein, réalisée en 2003 [34], montre que 58 % de l'ensemble des échantillons contrôlés (47 500 au total) ne contenaient pas de résidus ; 37 % présentaient des teneurs en résidus inférieures ou égales aux limites autorisées et 5 % dépassaient les limites. Pour la France, le pourcentage de dépassements des limites autorisées, soit 7 %, était légèrement supérieur à la moyenne européenne. Le calcul des apports alimentaires de pesticides doit être basé sur des données détaillées de consommation de produits alimentaires et des données précises et fiables sur les résidus de pesticides dans les denrées consommées [35]. Malheureusement, les données sont partielles ou inexistantes. L'OMS conseille de réaliser un calcul prévisionnel des quantités de résidus apportées par l'alimentation. Ce calcul théorique est basé sur les LMR (Limite Maximale de Résidu) et permet d'estimer l'Apport Journalier Maximum Théorique (AJMT). L'AJMT est ensuite exprimé en pourcentage de la Dose Journalière Admissible (DJA). En 1992, le CREDOC a réalisé ce type de calcul à partir de LMR et d'une estimation de consommation journalière de fruits et légumes [36]. Sur les 245 pesticides étudiés, 4 pesticides présentaient une AJMT supérieure à la DJA française (captane, cyhexatin-azocyclostin, atrazine et dinocap) et 15 présentaient une AJMT supérieure à la DJA proposée par le comité conjoint FAO/OMS. La Commission Européenne a, quant à elle, estimé les apports journaliers de certains pesticides à partir des résultats de son étude sur le contrôle des résidus de pesticides dans les produits d'origine végétale [34] et des données de consommation alimentaire de l'OMS [37]. Les doses de pesticides ingérés lors de la consommation d'un fruit, d'un légume ou d'un produit céréalier, dans le cas d'une exposition chronique, restent nettement inférieures à la DJA (de 0,04 % à 0,2 % de la DJA). Ces calculs représentent la dose de pesticides apportée par un seul aliment et non une ration alimentaire totale. La DGAL et l'INRA ont publié en 2004 les résultats d'une étude sur l'exposition aux mycotoxines, minéraux et éléments traces dans l'alimentation française. Dix pesticides figuraient dans la liste des substances recherchées. Le calcul des apports journaliers

de pesticides reposait sur les résultats de l'analyse de la ration alimentaire de la dernière enquête de consommation individuelle nationale (INCA). Sur les 10 pesticides recherchés, 6 ont été détectés (phosalon, triazophos, dicofol, parathion-ethyl, procymidon et vinchlozoline). Les apports journaliers variaient de 11,5 à 2,1 µg/jour/personne ce qui représentait de 0,2 à 4 % de la DJA. Ce type d'étude qui se base sur la contamination des matières premières est encore rare mais les quelques résultats existants suggèrent que les niveaux d'apport alimentaire de la population sont très inférieurs à la DJA.

1.4.3 Les eaux de pluie

L'Institut Pasteur de Lille a mesuré, de 1999 à 2002, les concentrations de 80 molécules (triazines, urées, carbamates, azoles, organophosphorés, organochlorés, organophosphorés. . .) dans les eaux de pluie recueillies en cinq points de la région Nord - Pas-de-Calais (Gravelines, Berck, Cambrai, Lille et un point central sous forte influence agricole). Ce travail a permis de constater que sur l'ensemble des sites, le nombre de composés détectés n'est pas négligeable : pour environ 10 % des échantillons, les teneurs mesurées étaient supérieures à 1 µg/L [38]

1.4.4 L'air

L'air peut être contaminé par les pesticides de manière locale, mais aussi à distance des lieux de traitements et hors périodes d'épandage, en particulier à cause du relargage de pesticides dans l'atmosphère à partir du sol [39] ou de la volatilisation des pesticides à partir des végétaux traités. Mais l'exposition aux pesticides par inhalation n'est pas seulement liée aux épandages sur les cultures. Les usages domestiques de pesticides, notamment dans les loge-

ments, contribuent également de manière significative à cette exposition [15, 17, 40]. Il n'existait pas en France de réseau national de surveillance de la contamination de l'air par les pesticides. Les protocoles d'analyses étant complexes et les teneurs estimées dans l'air parfois très faibles, la présence de pesticides a donc été recherchée au départ plus souvent dans d'autres compartiments de l'atmosphère : eaux de pluie, brouillard [39]. Cependant, la recherche de pesticides dans les compartiments particuliers et gazeux de l'atmosphère se développe depuis une dizaine d'années. Les concentrations observées dans l'atmosphère sont de l'ordre de 0,1 à quelques dizaines de nanogrammes par mètre cube d'air (ng/m³). Cette forme de pollution n'est pas localisée seulement dans les régions agricoles car les conditions atmosphériques (vents, différence de température et de pression) peuvent entraîner sa diffusion, notamment en milieu urbain. Cette diffusion peut se produire à une plus grande échelle et sur de grandes distances, ce qui explique la présence de pesticides organochlorés dans les précipitations en Antarctique [41]. En France, depuis quelques années, les réseaux de surveillance gérés par les Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) ont commencé à réaliser des mesures, notamment dans le cadre de projets soutenus par l'Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) [5]. Les AASQA de la région Alsace, Centre, Poitou-Charentes, Pays de la Loire, Champagne Ardennes, Languedoc-Roussillon, Midi-Pyrénées et Aquitaine ont réalisé entre 2001 et 2003 une série de campagnes de mesure de pesticides dans l'air [42]. Si ces données restent fragmentaires (campagnes de mesure ponctuelles et locales), elles ont permis de détecter la présence de pesticides dans toutes les phases atmosphériques en concentrations variables dans le temps et l'espace et en particulier des composés peu volatiles ou interdits, comme le lindane, ont été détectés [5].

2 Le programme *PHYTO AIR* et ses résultats

Les résultats du programme *PHYTO AIR* sont présentés en détail dans le rapport sur la *contamination du compartiment atmosphérique par les produits phytosanitaires dans la région Nord - Pas-de-Calais* [42] et résumés dans l'article de Delaunay [43].

2.1 Contexte

Après une première étude consacrée à la recherche de pesticides dans les eaux de pluie [38], l'Institut Pasteur de Lille et l'Association Agrée de Surveillance de la Qualité de l'Air ATMO Nord - Pas-de-Calais avec le soutien de l'ADEME et du Conseil Régional Nord - Pas-de-Calais ont réalisé une étude pilote dont l'objectif était de mettre en évidence la présence de pesticides dans l'atmosphère urbaine, sous forme particulaire et gazeuse. Cette étude était basée sur l'analyse répétée de pesticides sur 3 sites de prélèvement, un site urbain (Lille) et deux sites péri-urbains (Courcelle-lès-Lens et Caudry). Une centaine de pesticides ont été recherchés.

2.2 Méthodes

Le réseau de surveillance ATMO Nord - Pas-de-Calais a fourni les supports de prélèvement (filtres et mousses) et a réalisé les prélèvements. L'Institut Pasteur de Lille a conditionné, extrait et analysé les supports de prélèvements. Ceux-ci étaient changés toutes les semaines, le même jour pour les trois sites. Les prélèvements ont été réalisés de mars 2003 à mars 2005.

2.2.1 Substances recherchées

La démarche de choix des molécules à analyser était identique à celle adoptée dans le cadre de la recherche des pesticides dans les eaux de pluies [38]. Il s'agissait d'une analyse *multirésidus* qui a conduit à la recherche de 99 molécules représentatives de l'ensemble des composés utilisés au niveau local, régional ou national et susceptibles d'être présents dans l'atmosphère.

Les molécules recherchées étaient principalement des herbicides (53 %); ont également été recherchés des fongicides (23 %), des insecticides (17 %) ou des substances de croissance (1%), ainsi que des produits de dégradation (6 %).

Les 99 molécules dosées sont présentées ci-dessous, classées selon leur famille chimique :

Triazines : ametryne, atrazine, cyanazine, deisopropylatrazine, desethylatrazine, desethylterbutylazine, desmetryne, hydroxyatrazine, hydroxyterbutylazine, metribuzine, prometryne, propazine, secbumeton, simazine, terbumeton, terbutylazine, terbutryne ;

Urées : chlortoluron, dimefuron, diuron, ethidimuron, flazasulfuron, isoproturon, methabenzthiazuron, metobromuron, metoxuron, metsulfuron methyle, monodesmethylisoproturon, monuron, neburon, pencycuron ;

Azoles : cyproconazole, epoxiconazole, flutriafol, flusilazole, hexaconazole, prochloraze, propiconazole, tetraconazole, thiabendazole ;

Carbamates : aldicarbe, carbaryl, carbofuran, ethiofencarbe, phenmediphame, pyrimicarbe, prosulfocarbe ;

Phosphorés : chlorpyrifos-methyl, diazinon, dimethoate, ethion, oxydemeton-methyl, phosalone, phosphamidon ;

Anilides :alachlore, butraline, metazachlore, metolachlor, pendimethaline ;

Morpholines : fenpropidine, fenpropimorphe ;

Organochlorés : chlorothalonil, dieldrine, endosulfan, heptachlore, lindane ;

Uraciles : bromacile, lenacile ;

Phénoxyalcanoïques : bentazone, bromoxynil, 2,4-D, 2,4-DP, dicamba, fluroxypyr, MCPA, MCPP, 2,4,5-T, triclopyr ;

Amides : carbetamide, dimethenamid, metalaxyl, oxadixyl, propyzamide ;

Triazinones : hexazinone, metamitron ;

Strobilurines : azoxystrobine, kresoxim-methyl ;

Divers : carbendazime, cymoxanil, cyprodinil, diflufenicanil, diphenylamine, ethoxyquine, fipronil, imazamethabenz-methyl, imazaquine, imidaclopride, ioxynil, tebutame ;

En plus de ces 99 substances recherchées sur les trois sites pendant l'ensemble de la période, le glyphosate a été recherché à titre expérimental sur le site de Caudry, et uniquement de mars à novembre.

2.2.2 Sites de prélèvement

En raison des contraintes de prélèvement, liées aux particularités du préleveur, et du coût des analyses, le nombre de sites a été limité à 3. Un site de mesure a été choisi par territoire de compétence du réseau, à l'exception du littoral. Le programme s'intéressait à

l'exposition de la population aux pesticides présents dans l'air ambiant et, donc, les stations de mesure ne devaient pas être situées à proximité immédiate de parcelles cultivées. Les préleveurs ont été installés sur des sites déjà équipés de stations fixes de mesure. Les sites retenus étaient implantés à Lille en milieu urbain dense, à Courcelles-les-Lens et à Caudry en milieu péri-urbain (la densité de population étant moins importante à Caudry).

2.2.3 Méthodes de prélèvement et d'analyse

L'échantillonnage était réalisé en continu sur une semaine grâce à un préleveur moyen débit ($1\text{m}^3/\text{h}$) de type *Partisol Spéciation*. L'air était aspiré par le préleveur et passait à travers un filtre de fibres de quartz et une mousse en polyuréthane. La répétabilité de la méthode a été évaluée par des doublons : deux cartouches étaient installées simultanément sur le préleveur, elles subissaient les mêmes conditions de manipulation, de prélèvement et d'analyse que les échantillons. Des cartouches ont été manipulées dans les mêmes conditions, placées sur le préleveur pendant une semaine mais n'ont pas subi de prélèvement afin de réaliser des blancs de terrain.

Les échantillons (filtres et mousses) ont été extraits par un solvant adapté, puis analysés par couplage de la chromatographie liquide avec la spectrométrie de masse (LC-MS/MS). Le seuil de quantification des molécules recherchées, à l'exception du glyphosate, était de $0,05\text{ ng}/\text{m}^3$.

Cas particulier du Glyphosate Le glyphosate a été sélectionné parmi les molécules à rechercher du fait de son utilisation fréquente comme désherbant par les particuliers. Le type de prélèvement utilisé dans le projet *PHYTO AIR* présentait les meilleurs compromis entre les contraintes de l'étude et la qualité de piégeage, mais il n'est pas le mieux adapté au piégeage du glyphosate. Il conviendra donc de rester prudent dans l'interprétation des résultats des mesures de glyphosate. D'autre part, le glyphosate est une molécule dont les propriétés physico-chimiques diffèrent nettement des autres molécules habituellement retrouvées dans les formulations de pesticides. Il a donc nécessité une extraction et une analyse spécifique. L'équipe du projet *PHYTO AIR* a donc ajouté chaque semaine une cartouche pour doubler les filtres et les mousses et permettre deux extractions et deux analyses différentes, une pour le glyphosate et une pour le reste des molécules. Le seuil de quantification du glyphosate est de $0,1\text{ ng}/\text{m}^3$

2.3 Résultats

Les résultats des analyses effectuées sur les filtres et les mousses nous ont été transmises par l'Institut Pasteur de Lille sous forme de fichier EXCEL puis importées et analysées dans l'environnement R [44]. Nous avons sommé les concentrations mesurées sur le filtre et la mousse en comptant 0 quand la concentration était non quantifiée dans la mousse ou dans le filtre et non quantifiée (NA) quand les concentrations dans le filtre et la mousse étaient inférieures à la limite de quantification.

Au total, 293 prélèvements ont été effectués sur les 3 sites au cours de la période 2003–2005, seuls 3 prélèvements ont été jugés non valides (tableaux 2.2 à 2.4). Pour le Glyphosate, 59 prélèvements ont été réalisés (tableau 2.3). Durant les deux années de prélèvement, 62 molécules sur les 99 recherchées ont été détectées au moins une fois sur l'un des trois sites (44 sur Lille, 49 sur Caudry + le Glyphosate et 52 sur Courcelles). Ces molécules appartiennent essentiellement aux familles des azoles, des carbamates, des anilides, des morpholines, des organochlorés, des amides et des strobilurines (tableaux 2.2 à 2.4). Les substances avec les fréquences de quantification les plus élevées (supérieures à 40 %) sont les mêmes pour les 3 sites : la diphénylamine, le lindane et l'endosulfan (figure 2.1).

L'observation des concentrations hebdomadaires au cours de la période 2003–2005 met en évidence les fortes concentrations pendant les périodes d'utilisation à partir d'avril et jusqu'au mois de juillet mais, si cette tendance était nette en 2003, elle était moins visible les 2 années suivantes (figures 2.2 à 2.17). Certaines molécules étaient présentes toute l'année, d'autres n'ont été détectées qu'une ou deux fois au cours de la période. Le glyphosate a été détecté dans 14 % des prélèvements et uniquement en période estivale avec une valeur maximale de $0,19\text{ ng}/\text{m}^3$.

Sur les 99 molécules recherchées, 12 présentaient des valeurs maximales supérieures à $1\text{ ng}/\text{m}^3$ (figure 2.18)¹ : le chlorothalonil ($30,51\text{ ng}/\text{m}^3$), le pro-sulfocarbe ($28,50\text{ ng}/\text{m}^3$), la pendiméthaline ($18,35\text{ ng}/\text{m}^3$), l'endosulfan ($11,02\text{ ng}/\text{m}^3$), le fenpropimorphe ($9,52\text{ ng}/\text{m}^3$), la fenpropidine ($5,11\text{ ng}/\text{m}^3$), le dimethenamid ($2,86\text{ ng}/\text{m}^3$), le chlorphyriphos-méthyl ($3,09\text{ ng}/\text{m}^3$), l'heptachlore ($2,75\text{ ng}/\text{m}^3$), le cyprodinil ($1,53\text{ ng}/\text{m}^3$), la diphénylamine ($1,28\text{ ng}/\text{m}^3$) et l'alachlore ($1,15\text{ ng}/\text{m}^3$). Si en ce qui concerne les produits détectés, les résultats des 3 sites sont très comparables (figure 2.1), par contre les valeurs maximales détectées sont plutôt inférieures pour le sites de Lille, le site le plus urbanisé (figure 2.18).

¹ Dans cette figure, le critère utilisé pour ordonner les substances est la somme des valeurs mesurées sur les trois sites.

2.4 Discussion

Sur les trois sites, la diphénylamine et le lindane ont été détectés sur plus de la moitié des prélèvements. Le lindane est un insecticide de la famille des organochlorés. Son usage est limité depuis 1998. Il était utilisé en agriculture pour le traitement des sols (maïs, bettrave. . .), des semences (céréales, colza, lin. . .) et pour le traitement foliaire (arboriculture, cultures maraîchères, ornementales et fourragères. . .). Son utilisation est encore autorisée pour la protection du bois d'œuvre jusqu'en septembre 2006 et pour les traitements antiparasitaires du bétail et des animaux de compagnie et pour des applications de Santé publique (traitement de la gale) jusqu'en 2007 [45]. La présence de lindane dans l'environnement est uniquement d'origine anthropique. Dans l'atmosphère, le lindane provenait de l'utilisation agricole comme pesticide avant son interdiction, mais aussi de l'érosion par le vent de sols contaminés et de la volatilisation à partir de ces sols. D'après l'INERIS, la concentration de fond de lindane dans l'air ambiant serait inférieure à 0,2 ng/m³ [46].

La diphénylamine est principalement utilisée comme fongicide du pommier [42]. Elle est aussi utilisée pour de nombreuses autres applications, dans le domaine militaire (stabilisant pour explosif), dans l'industrie du caoutchouc et des élastomères ou dans la composition de teintures. Ces nombreuses utilisations pourraient expliquer sa forte fréquence de détection.

Les produits fréquemment détectés à la fois dans l'étude sur les eaux de pluie et sur les concentrations dans l'atmosphère étaient le prosulfocarbe, la

propyzamide et l'isoproturon [38]. La comparaison avec les concentrations de pesticides mesurés dans d'autres régions (Bretagne, Centre, Poitou-Charentes) ne peut être réalisée que pour quelques substances. En effet, la liste de molécules recherchées est très variable selon les régions, car elle a été le plus souvent adaptée aux pratiques culturelles locales qui étaient elles-mêmes très variées selon les régions. Globalement, pour les molécules qui ont pu être comparées, les concentrations étaient du même ordre de grandeur dans les différentes régions mais les maxima mesurés étaient assez souvent supérieurs dans la région Nord - Pas-de-Calais. L'alachlore a été moins fréquemment détecté dans la région Nord - Pas-de-Calais que dans les autres régions et les concentrations mesurées étaient plus faibles. La comparaison avec les concentrations observées dans des villes de l'Alberta [47] montre que pour les molécules qui ont pu être comparées, les valeurs observées dans le Nord - Pas-de-Calais sont du même ordre de grandeur, par contre les valeurs observées en Californie [27] étaient nettement supérieures (tableau 2.1).

Ces mesures dans l'air ambiant ont été réalisées pour donner des indications sur l'exposition de la population générale. Leurs résultats sont donc inférieurs aux résultats d'études concernant des populations vivant en milieu agricole, par exemple des familles d'agriculteurs, ou bien sûr, des agriculteurs au cours de l'usage professionnel des pesticides. A titre d'exemple, les valeurs limites de moyenne d'exposition pour 8 heures de travail par jour (VME) sont de l'ordre du milligramme : pour le lindane, la diphénylamine et l'endosulfan, les VME sont respectivement 0,5 mg/m³, 10 mg/m³ et 0,1 mg/m³ [8].

Tableau 2.1 : Comparaison des résultats du programme *PHYTO AIR* avec des données américaines en ng/m³ (min-max)

Molécules	<i>PHYTO AIR</i>	Alberta [47]	Californie [27]
Lindane	0,62 – 0,98	0,19 – 2,92	-
Diazinon	0,11 – 5,64	0,12 – 0,27	10 – 160
Chlorotalonil	1,61 – 30,51	-	3,9 – 4,6
Bromoxynil	0,06 – 0,10	0,08 – 0,20	-
Endosulfan	3,35 - 11,08	-	3,8 - 170

Tableau 2.2 : Résultats de la station de Lille (somme mousse+filtre) en ng/m³

Produit	Min.	P5	P25	P50	P75	P95	Max.	Nb. mes.	Nb. quant.
Triazines									
Ametryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Atrazine	NA	NA	NA	NA	NA	0.08	0.40	92	8
Cyanazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Deisopropylatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.12	92	2
Desethylatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.13	92	1
Desethylterbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Desmetryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Hydroxyatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Hydroxyterbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Metribuzine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	1
Prometryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Propazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Secbumeton	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Simazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Terbumeton	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Terbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Terbutryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Triazinones									
Hexazinone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Metamitrone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Urées									
Chlortoluron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Dimefuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Diuron	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	0.16	92	6
Ethidimuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.08	92	1
Flazasulfuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Isoproturon	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	0.41	92	11
Methabenzthiazuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Metobromuron	NA	NA	NA	NA	NA	0.03	0.18	92	5
Metoxuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Metsulfuron methyle	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Monodesmethylisoproturon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Monuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	2
Neburon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Pencycuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Azoles									
Cyproconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	92	2
Epoxiconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	92	2
Flutriafol	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Flusilazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Hexaconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Prochloraze	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	1
Propiconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0

Tableau 2.2 : Résultats de la station de Lille (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
Tetraconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.16	92	2
Thiabendazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Carbamates									
Aldicarbe	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	92	2
Carbaryl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.31	92	1
Carbofuran	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	92	1
Ethiofencarbe	NA	NA	NA	NA	NA	0.13	0.39	92	9
Phenmediphame	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	2
Pyrimicarbe	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Prosulfocarbe	NA	NA	NA	NA	0.14	3.25	8.51	92	34
Phosphorés									
Chlorpyriphos-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	0.86	92	7
Diazinon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	92	1
Dimethoate	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Ethion	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.17	92	2
Oxydemeton-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Phosalone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Phosphamidon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Anilides									
Alachlore	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	0.17	92	9
Butraline	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	2
Metazachlore	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Metolachlor	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	0.30	92	6
Pendimethaline	NA	NA	NA	NA	0.08	0.62	1.69	92	29
Morpholines									
Fenpropidine	NA	NA	NA	NA	NA	0.21	0.62	92	22
Fenpropimorphe	NA	NA	NA	NA	0.05	0.22	0.45	92	26
Organochlorés									
Chlorothalonil	NA	NA	NA	NA	0.01	0.75	5.97	92	23
Dieldrine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Endosulfan	NA	NA	NA	NA	0.26	1.83	3.35	92	40
Heptachlore	NA	NA	NA	NA	NA	0.16	1.09	92	10
Lindane	NA	NA	NA	0.03	0.14	0.39	0.80	92	46
Uraciles									
Bromacile	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Lenacile	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Phénoxyalcanoïques									
Bentazone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Bromoxynil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	1
2,4-D	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
2,4-DP	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Dicamba	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Fluroxypyr	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.25	92	1
MCPA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0

Tableau 2.2 : Résultats de la station de Lille (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
MCPP	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	92	1
2,4,5-T	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Triclopyr	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Amides									
Carbetamide	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Dimethenamid	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	0.11	92	6
Metalaxyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.11	92	3
Oxadixyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Propyzamide	NA	NA	NA	NA	NA	0.15	0.31	92	14
Strobilurines									
Azoxystrobine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Kresoxim-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	92	4
Divers									
Carbendazime	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Cymoxanil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	1
Cyprodinil	NA	NA	NA	NA	NA	0.03	0.40	92	5
Diflufenicanil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.25	92	2
Diphenylamine	NA	NA	0.04	0.10	0.17	0.44	1.28	92	69
Ethoxyquine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	92	1
Fipronil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Imazamethabenz-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Imazaquine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Imidaclopride	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Ioxynil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0
Tebutame	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	92	0

Tableau 2.3 : Résultats de la station de Caudry (somme mousse+filtre) en ng/m³

Produit	Min.	P5	P25	P50	P75	P95	Max.	Nb. mes.	Nb. quant.
Triazines									
Ametryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Atrazine	NA	NA	NA	NA	NA	0.27	0.99	94	9
Cyanazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Deisopropylatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	94	1
Desethylatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.15	94	2
Desethylterbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.13	94	1
Desmetryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Hydroxyatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Hydroxyterbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Metribuzine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Prometryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Propazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Sebumeton	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Simazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0

Tableau 2.3 : Résultats de la station de Caudry (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
Terbumeton	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Terbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Terbutryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	94	1
Triazinones									
Hexazinone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Metamitrone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Urées									
Chlortoluron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	94	1
Dimefuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Diuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.24	94	4
Ethidimuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Flazasulfuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Isoproturon	NA	NA	NA	NA	NA	0.18	0.37	94	13
Methabenzthiazuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Metobromuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	94	1
Metoxuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Metsulfuron methyle	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Monodesmethylisoproturon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Monuron	NA	NA	NA	NA	NA	0.03	0.55	94	5
Neburon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Pencycuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Azoles									
Cyproconazole	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	0.34	94	6
Epoxiconazole	NA	NA	NA	NA	NA	0.04	0.09	94	6
Flutriafol	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Flusilazole	NA	NA	NA	NA	NA	0.03	0.22	94	5
Hexaconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.19	94	3
Prochloraze	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	94	1
Propiconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	94	4
Tetraconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.13	94	1
Thiabendazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Carbamates									
Aldicarbe	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Carbaryl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Carbofuran	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.37	94	4
Ethiofencarbe	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	0.38	94	11
Phenmediphame	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.36	94	3
Pyrimicarbe	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Prosulfocarbe	NA	NA	NA	NA	0.07	1.24	28.50	94	28
Phosphorés									
Chlorpyriphos-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.32	94	2
Diazinon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	5.64	94	3
Dimethoate	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Ethion	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.65	94	2

Tableau 2.3 : Résultats de la station de Caudry (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
Oxydemeton-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Phosalone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Phosphamidon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Anilides									
Alachlore	NA	NA	NA	NA	NA	0.19	1.15	94	8
Butraline	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	94	3
Metazachlore	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.19	94	3
Metolachlor	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.41	94	4
Pendimethaline	NA	NA	NA	NA	0.13	1.95	18.35	94	36
Morpholines									
Fenpropidine	NA	NA	NA	NA	0.32	1.69	3.51	94	35
Fenpropimorphe	NA	NA	NA	NA	0.08	0.88	5.65	94	30
Organochlorés									
Chlorothalonil	NA	NA	NA	NA	NA	0.53	1.61	94	22
Dieldrine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	94	1
Endosulfan	NA	NA	NA	NA	0.30	5.53	11.02	94	43
Heptachlore	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	2.75	94	10
Lindane	NA	NA	NA	0.05	0.11	0.32	0.62	94	48
Uraciles									
Bromacile	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Lenacile	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Phénoxyalcanoïques									
Bentazone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Bromoxynil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	94	1
2,4-D	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
2,4-DP	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Dicamba	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Fluroxypyr	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
MCPA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	94	1
MCPP	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
2,4,5-T	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Triclopyr	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Amides									
Carbetamide	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Dimethenamid	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	2.86	94	7
Metalaxyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	94	1
Oxadixyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	94	0
Propyzamide	NA	NA	NA	NA	NA	0.19	0.30	94	12
Strobilurines									
Azoxystrobine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	94	4
Kresoxim-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	0.02	0.39	94	5
Divers									
Carbendazime	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	93	0
Cymoxanil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.41	93	1

Tableau 2.3 : Résultats de la station de Caudry (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
Cyprodinil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.43	93	3
Diflufenicanil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	93	1
Diphenylamine	NA	NA	NA	0.05	0.13	0.33	0.88	93	48
Ethoxyquine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.31	93	3
Fipronil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	93	0
Imazamethabenz-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	93	1
Imazaquine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	93	0
Imidaclopride	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	93	0
Ioxynil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	93	0
Tebutame	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	93	0
Glyphosate									
Glyphosate	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	0.19	59	8

Tableau 2.4 : Résultats de la station de Courcelles (somme mousse+filtre) en ng/m³

Produit	Min.	P5	P25	P50	P75	P95	Max.	Nb. mes.	Nb. quant.
Triazines									
Ametryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Atrazine	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	0.39	104	9
Cyanazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Deisopropylatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Desethylatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	104	2
Desethylterbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	104	1
Desmetryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Hydroxyatrazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Hydroxyterbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Metribuzine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Prometryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	104	1
Propazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Secbumeton	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Simazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Terbumeton	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Terbuthylazine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Terbutryne	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Triazinones									
Hexazinone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Metamitrone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Urées									
Chlortoluron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.10	104	1
Dimefuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	104	1
Diuron	NA	NA	NA	NA	NA	0.16	0.33	104	16
Ethidimuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	104	1
Flazasulfuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Isoproturon	NA	NA	NA	NA	NA	0.12	0.42	104	12

Tableau 2.4 : Résultats de la station de Courcelles (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
Methabenzthiazuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Metobromuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.12	104	1
Metoxuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Metsulfuron methyle	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Monodesmethylisoproturon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Monuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	104	1
Neburon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Pencycuron	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Azoles									
Cyproconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.19	104	5
Epoxiconazole	NA	NA	NA	NA	NA	0.08	0.11	104	9
Flutriafol	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Flusilazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	104	4
Hexaconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	104	4
Prochloraze	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Propiconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.13	104	5
Tetraconazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.14	104	1
Thiabendazole	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Carbamates									
Aldicarbe	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Carbaryl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.74	104	3
Carbofuran	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.08	104	2
Ethiofencarbe	NA	NA	NA	NA	NA	0.22	0.82	104	18
Phenmediphame	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.18	104	2
Pyrimicarbe	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	104	1
Prosulfocarbe	NA	NA	NA	NA	0.11	1.58	13.86	104	39
Phosphorés									
Chlorpyriphos-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	3.09	104	6
Diazinon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.11	104	1
Dimethoate	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Ethion	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.43	104	2
Oxydemeton-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Phosalone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Phosphamidon	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Anilides									
Alachlore	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	0.28	104	6
Butraline	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.18	104	4
Metazachlore	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	104	2
Metolachlor	NA	NA	NA	NA	NA	0.05	0.35	104	6
Pendimethaline	NA	NA	NA	NA	0.11	0.93	6.29	104	36
Morpholines									
Fenpropidine	NA	NA	NA	NA	0.18	1.23	5.11	104	38
Fenpropimorphe	NA	NA	NA	NA	0.11	1.02	9.52	104	35
Organochlorés									

Tableau 2.4 : Résultats de la station de Courcelles (somme mousse+filtre) en ng/m³ (suite)

Produit	Min	P5	P25	P50	P75	P95	P100	Nb. mes.	Nb. quant.
Chlorothalonil	NA	NA	NA	NA	0.12	0.75	30.51	104	34
Dieldrine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	3.36	104	2
Endosulfan	NA	NA	NA	NA	0.24	1.92	5.10	104	50
Heptachlore	NA	NA	NA	NA	NA	0.12	0.24	104	12
Lindane	NA	NA	NA	0.07	0.21	0.46	0.98	104	57
Uraciles									
Bromacile	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Lenacile	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Phénoxyalcanoïques									
Bentazone	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Bromoxynil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	104	1
2,4-D	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.06	104	1
2,4-DP	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Dicamba	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Fluroxypyr	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
MCPA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.25	104	2
MCPP	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.07	104	1
2,4,5-T	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Triclopyr	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Amides									
Carbetamide	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.09	104	3
Dimethenamid	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.27	104	2
Metalaxyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.23	104	5
Oxadixyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Propyzamide	NA	NA	NA	NA	NA	0.22	0.65	104	19
Strobilurines									
Azoxystrobine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.11	104	4
Kresoxim-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.22	104	4
Divers									
Carbendazime	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Cymoxanil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Cyprodinil	NA	NA	NA	NA	NA	0.47	1.53	104	14
Diflufenicanil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.17	104	5
Diphenylamine	NA	NA	NA	0.06	0.11	0.29	0.84	104	60
Ethoxyquine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	0.18	104	4
Fipronil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Imazamethabenz-methyl	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Imazaquine	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Imidaclopride	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Ioxynil	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0
Tebutame	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	104	0

Figure 2.1 : Fréquence de quantification des différentes substances mesurées selon le site de prélèvement

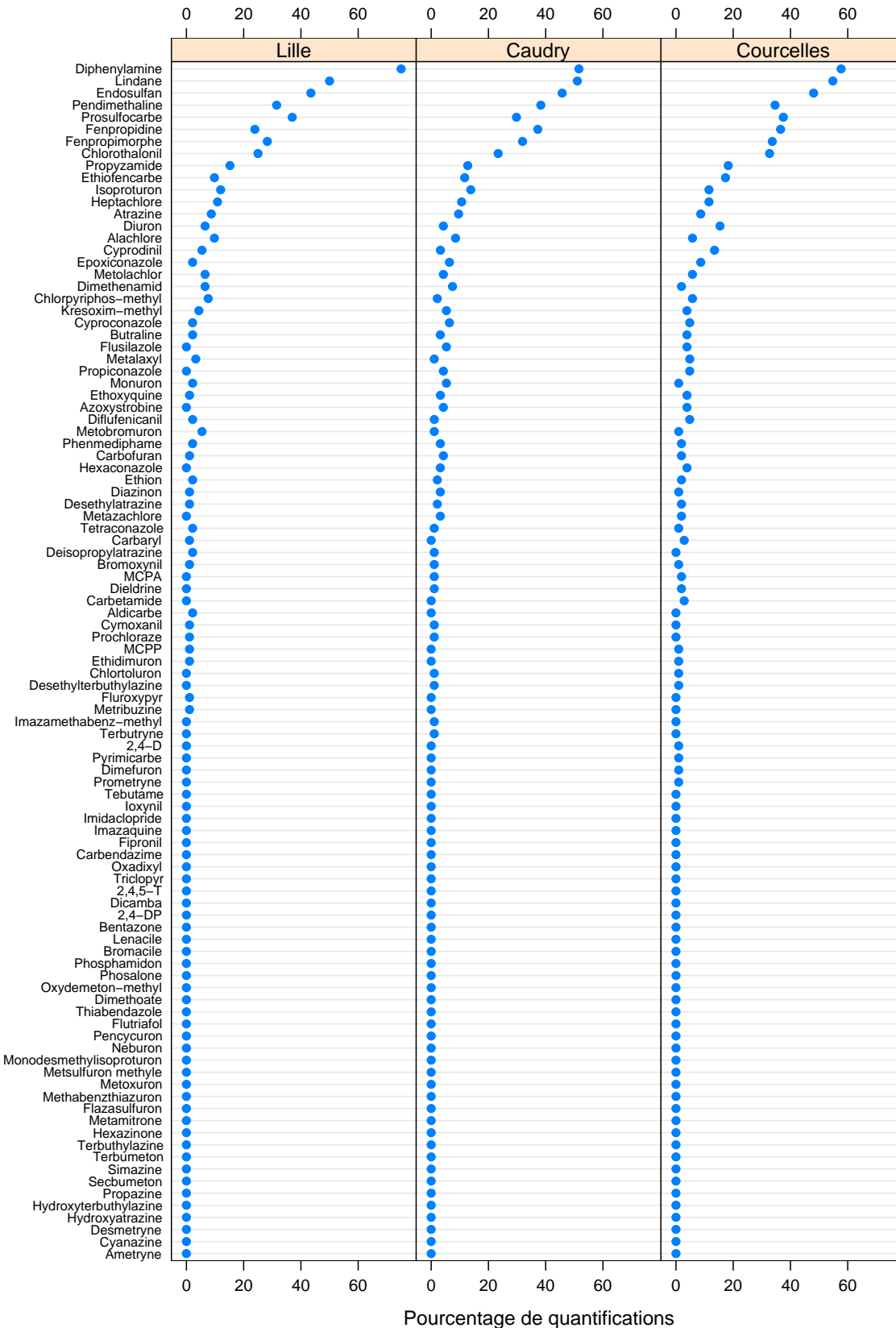


Figure 2.2 : Station de Lille

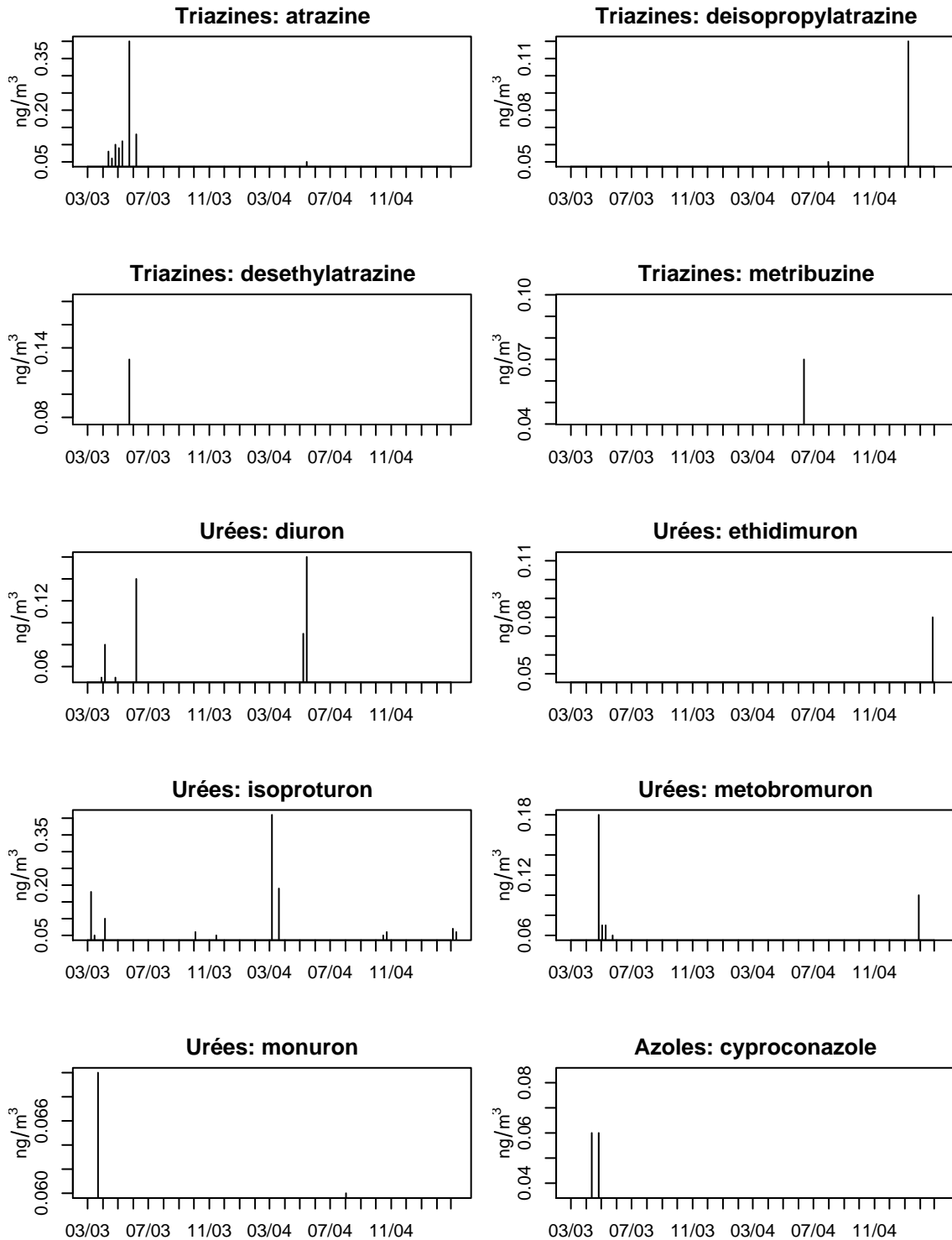


Figure 2.3 : Station de Lille (suite)

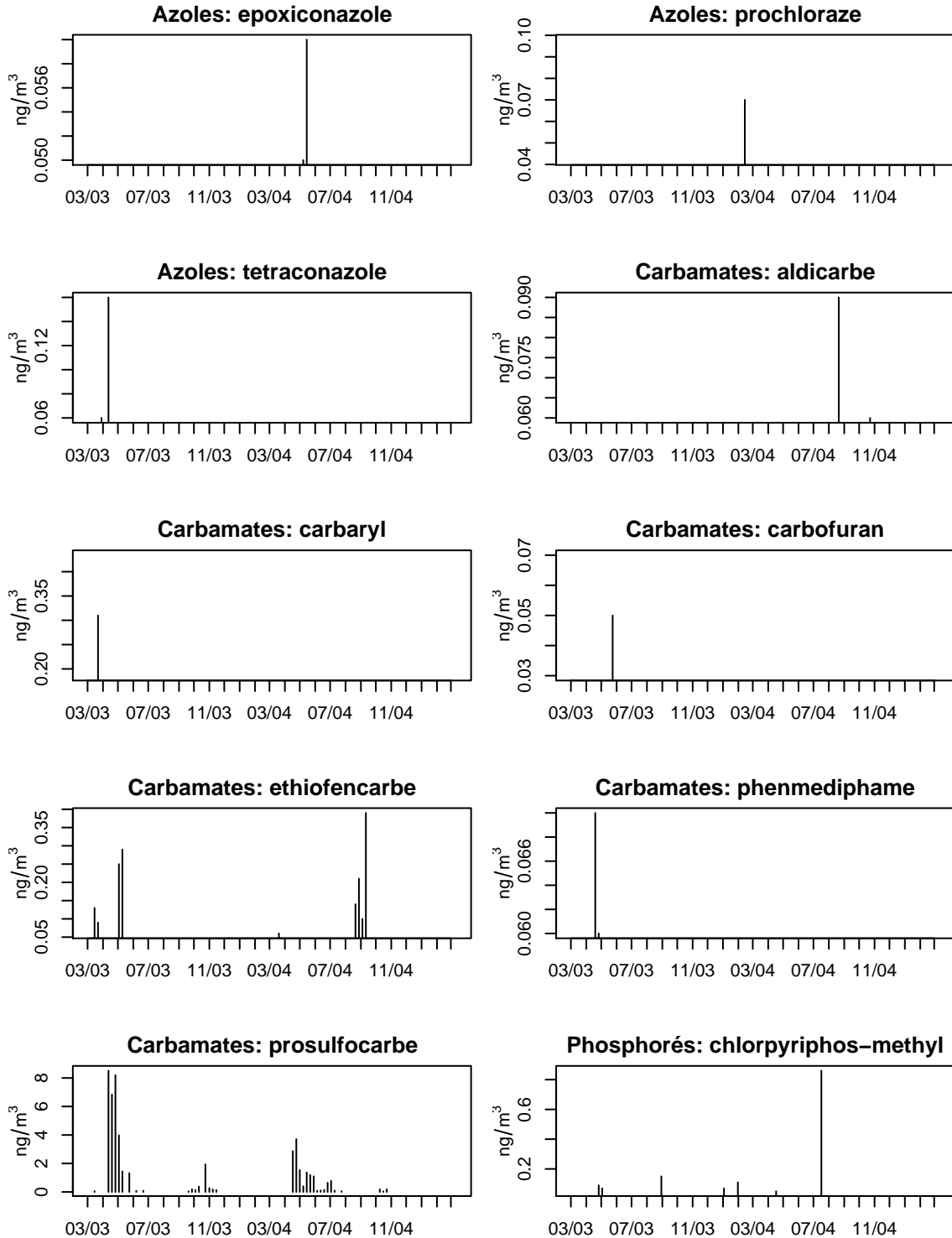


Figure 2.4 : Station de Lille (suite)

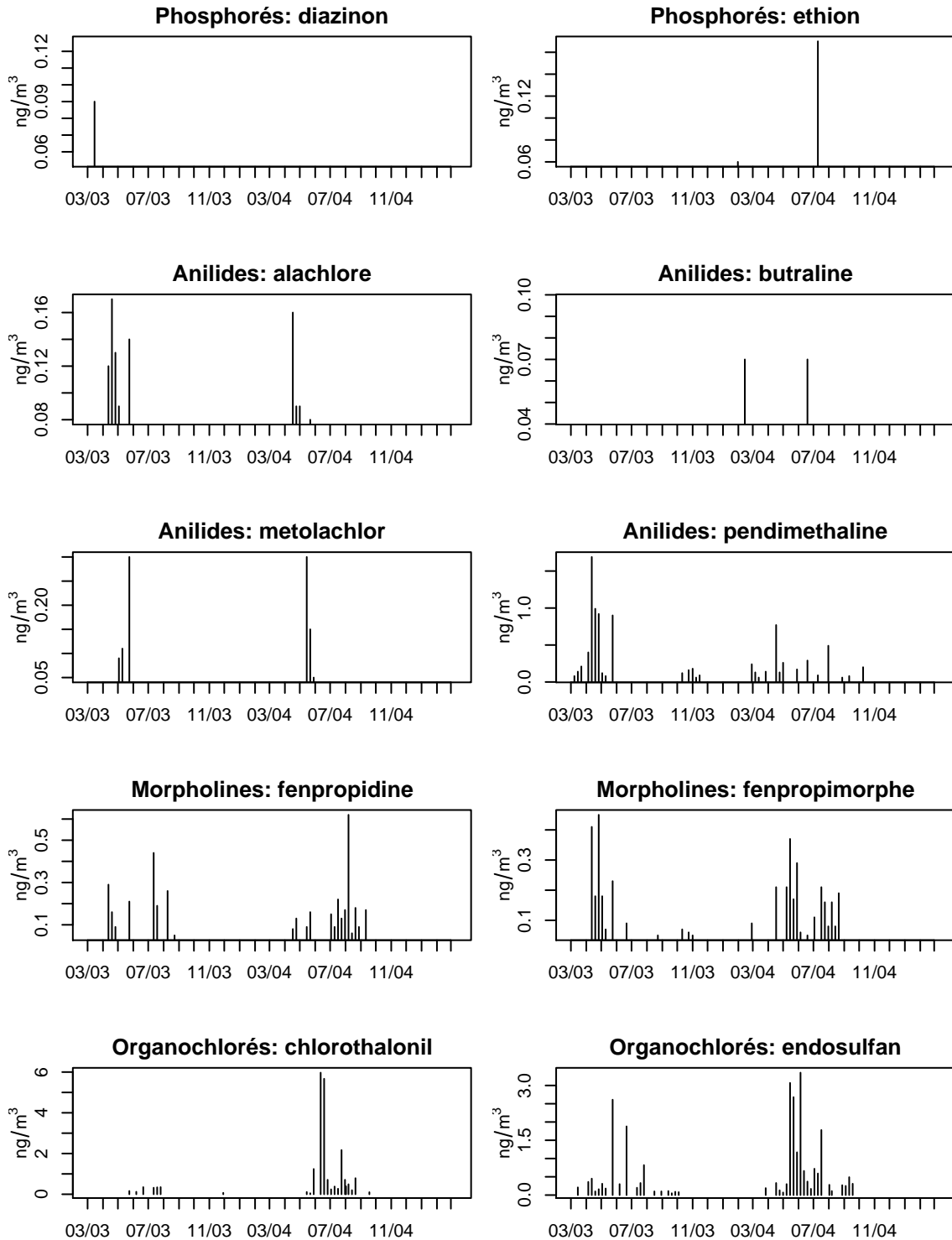


Figure 2.5 : Station de Lille (suite)

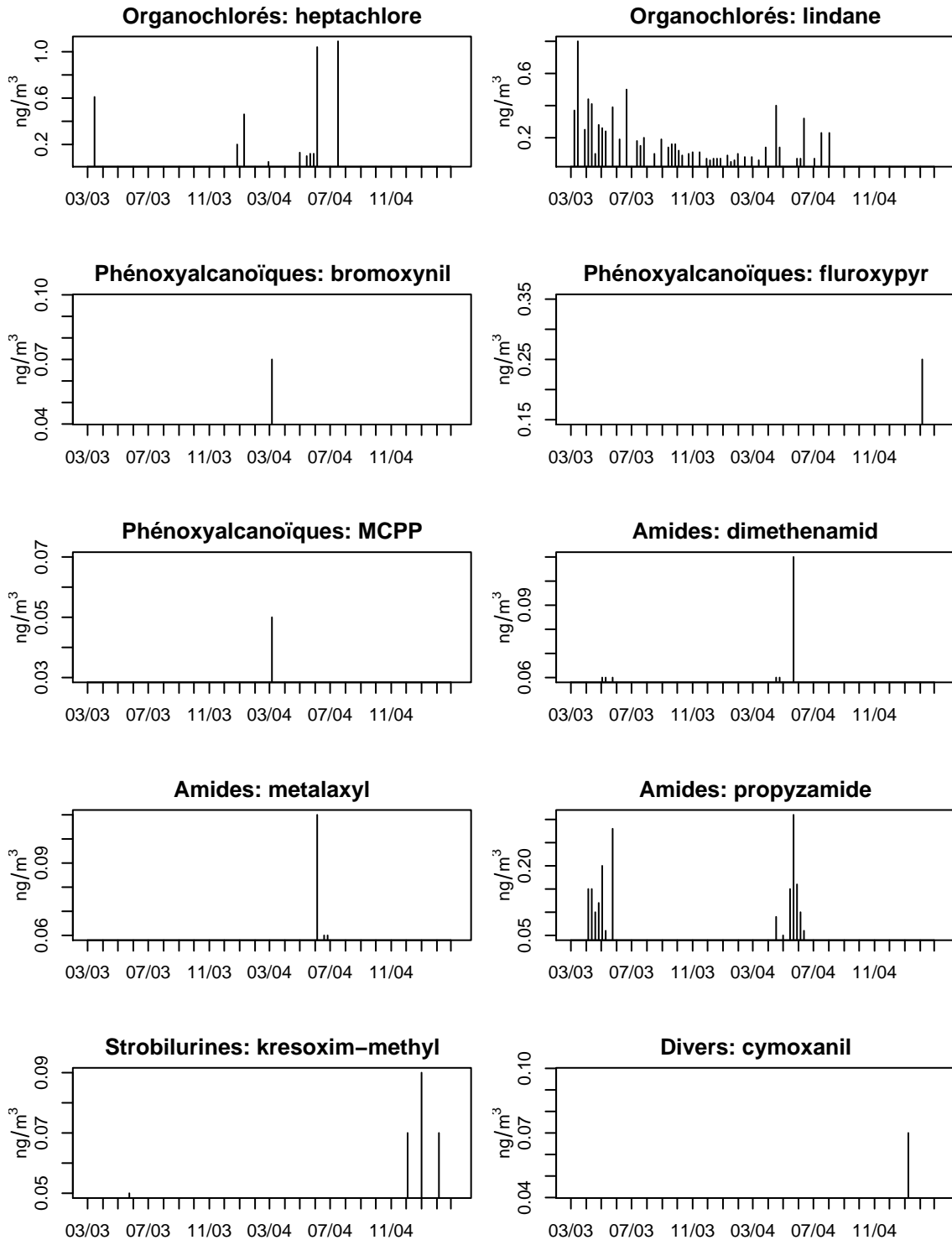


Figure 2.6 : Station de Lille (suite)

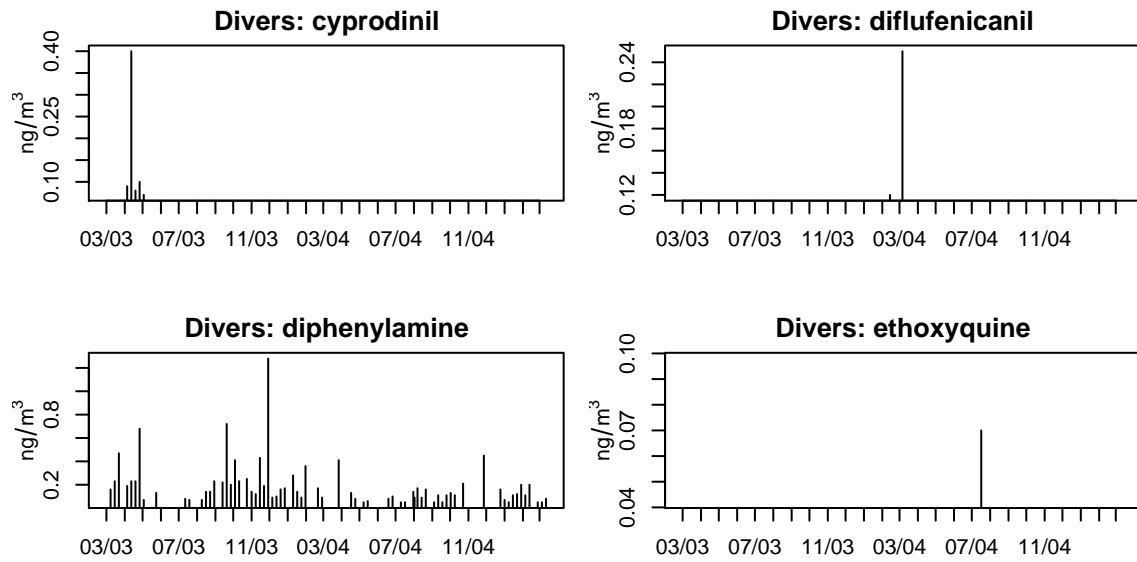


Figure 2.7 : Station de Caudry

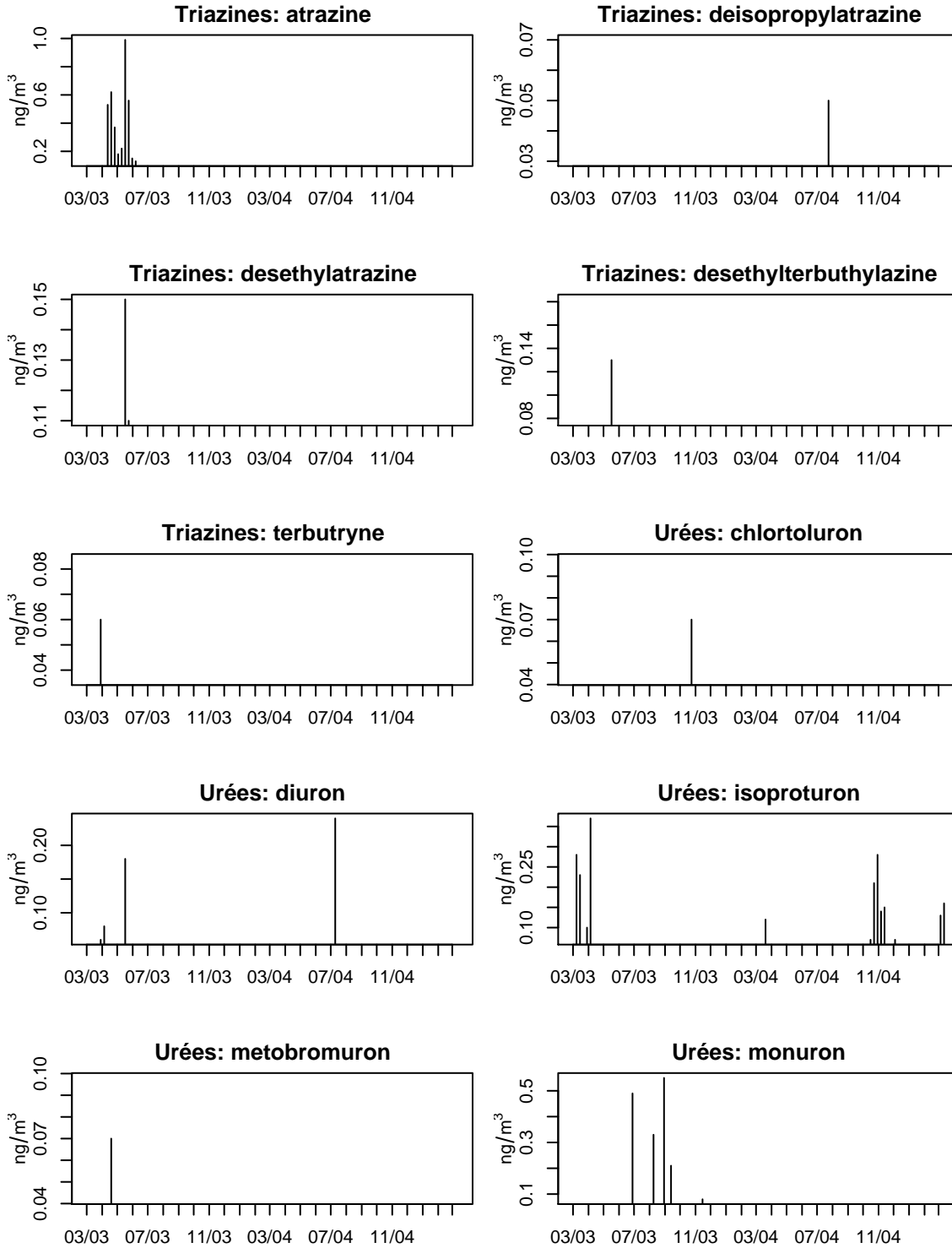


Figure 2.8 : Station de Caudry (suite)

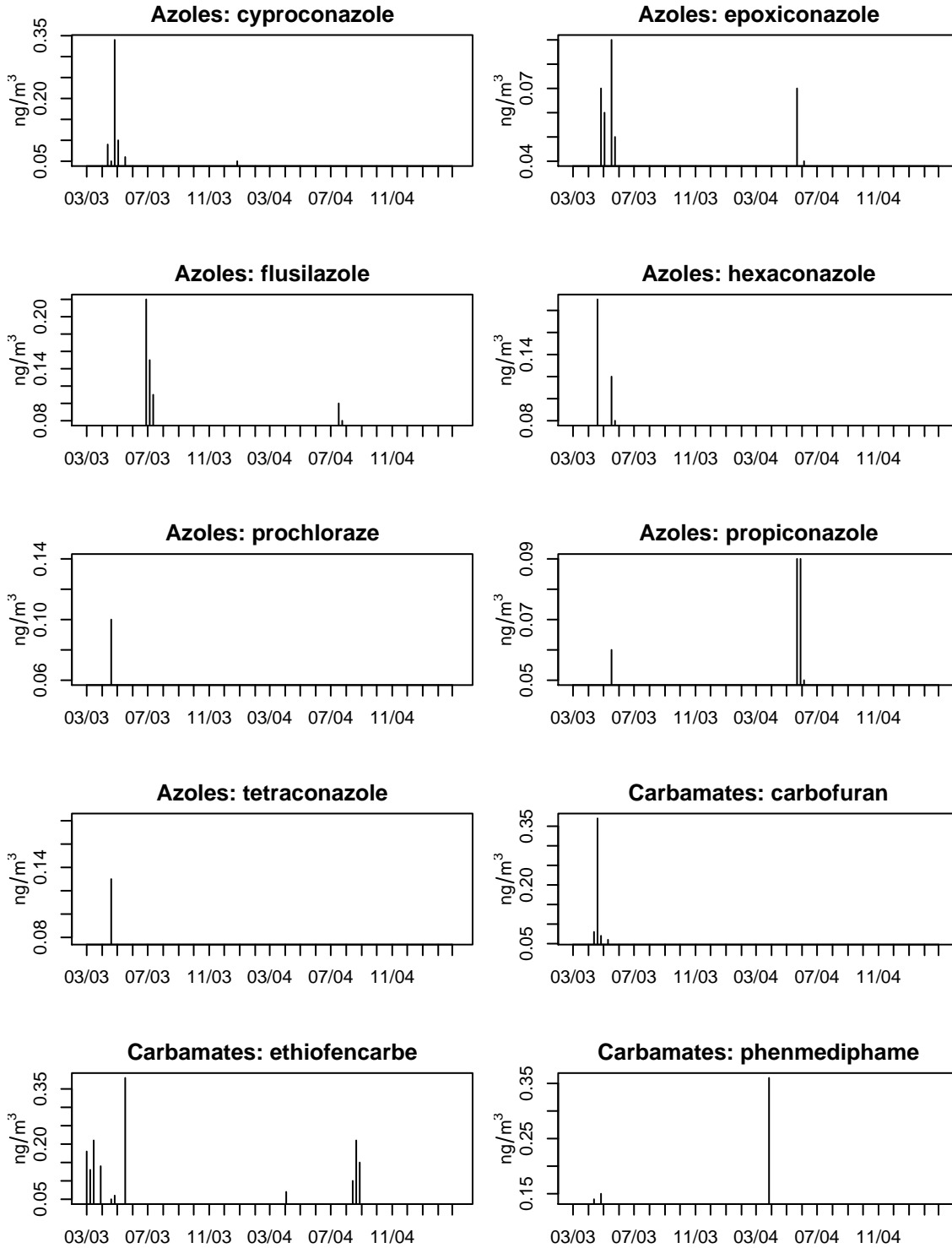


Figure 2.9 : Station de Caudry (suite)

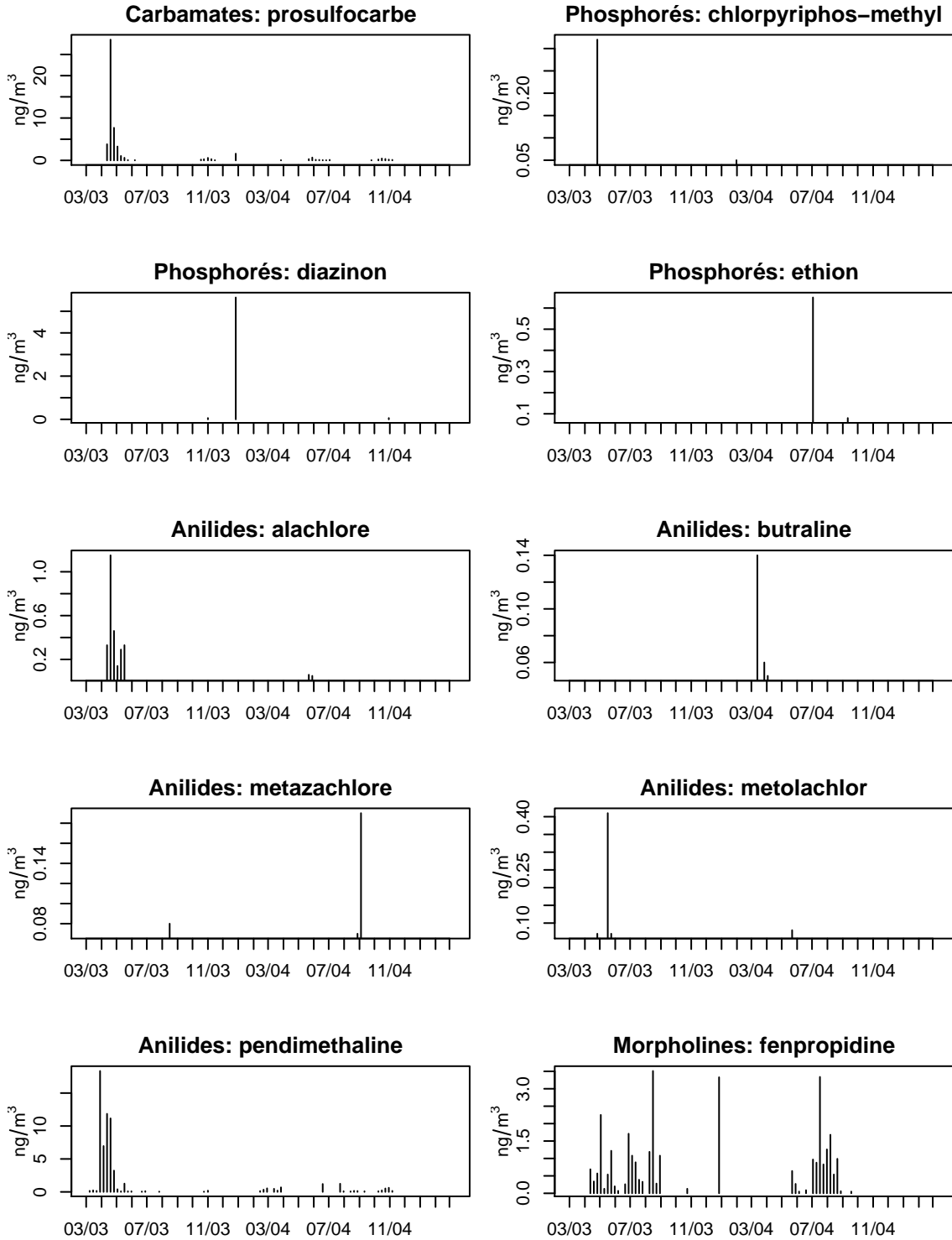


Figure 2.10 : Station de Caudry (suite)

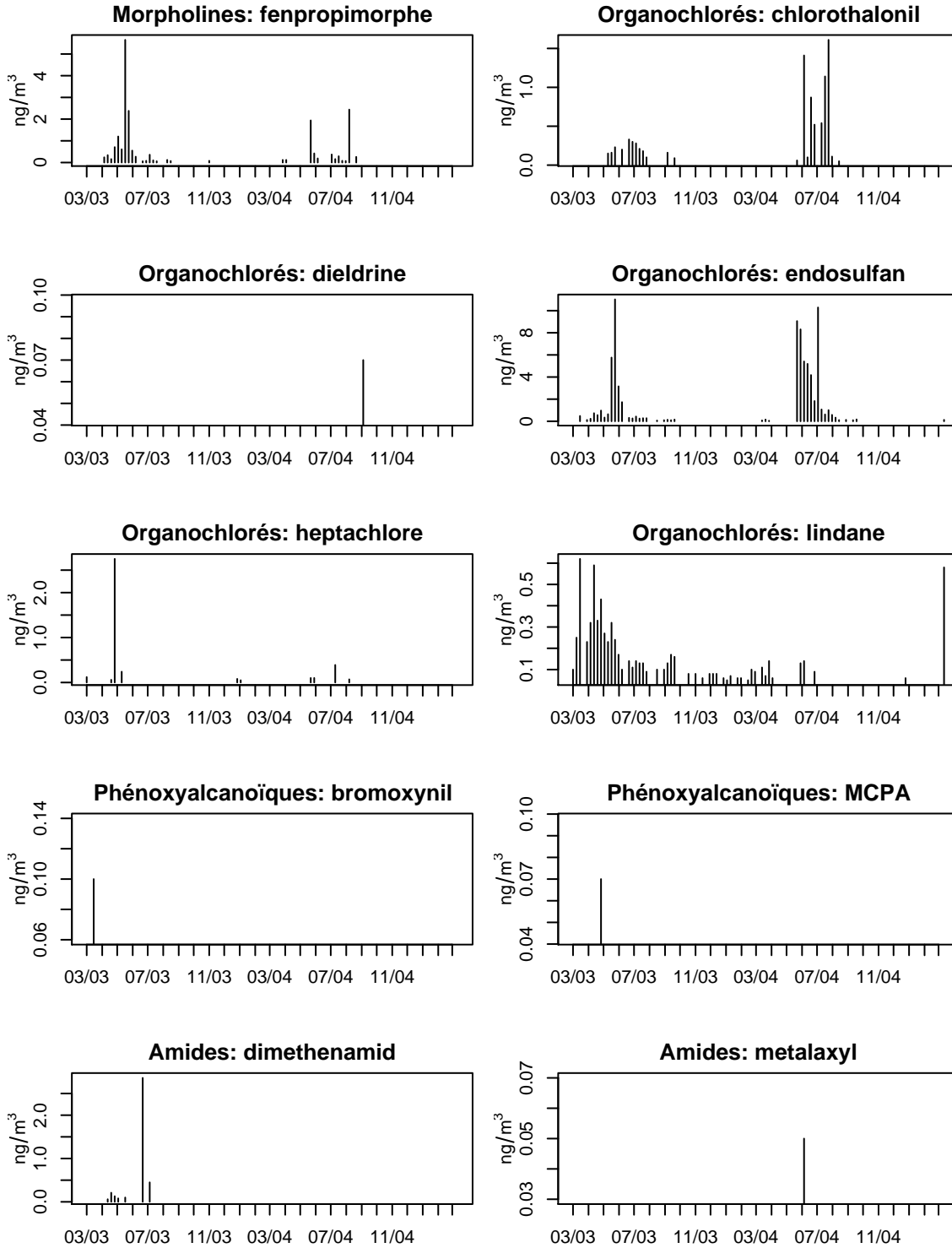


Figure 2.11 : Station de Caudry (suite)

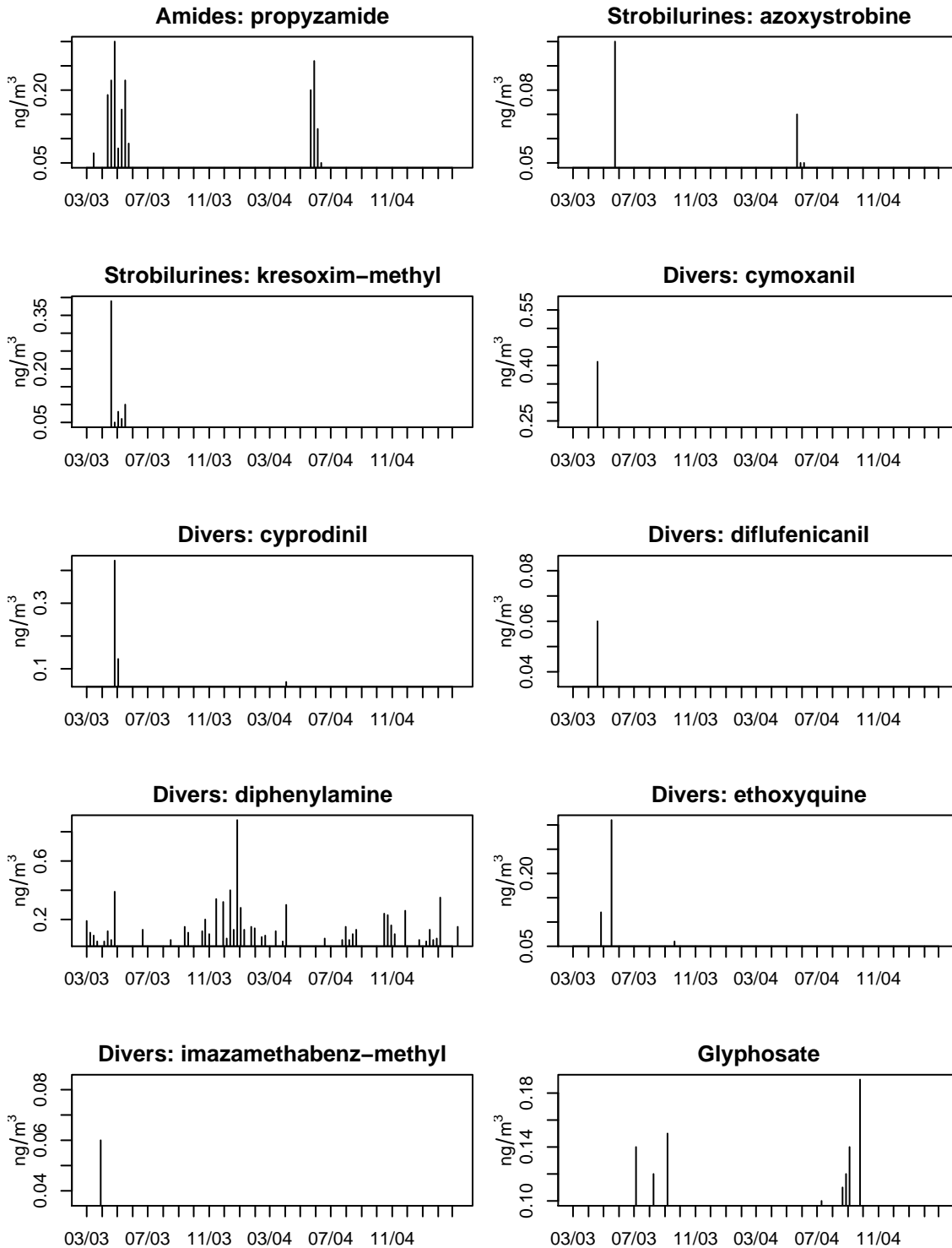


Figure 2.12 : Station de Courcelles

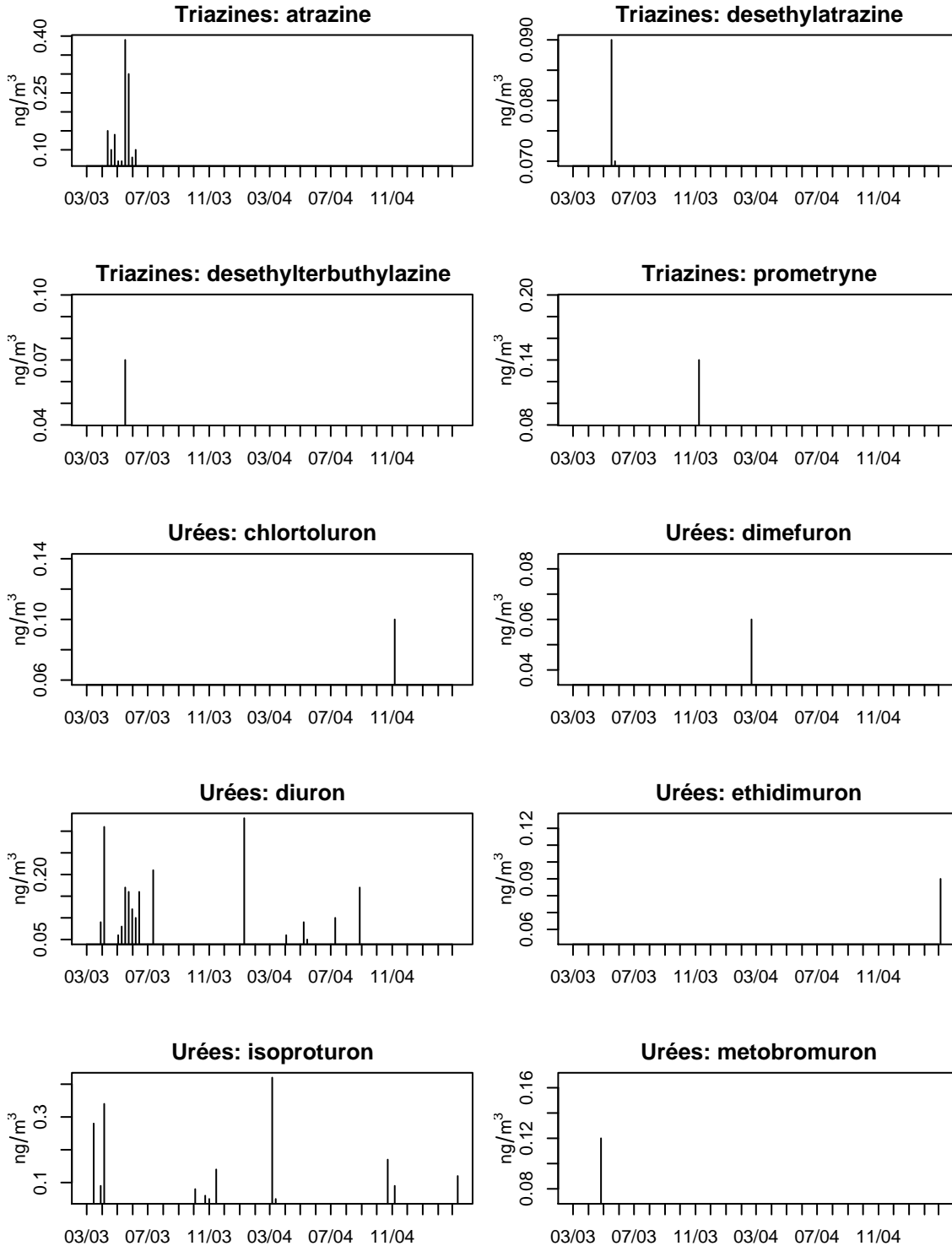


Figure 2.13 : Station de Courcelles (suite)

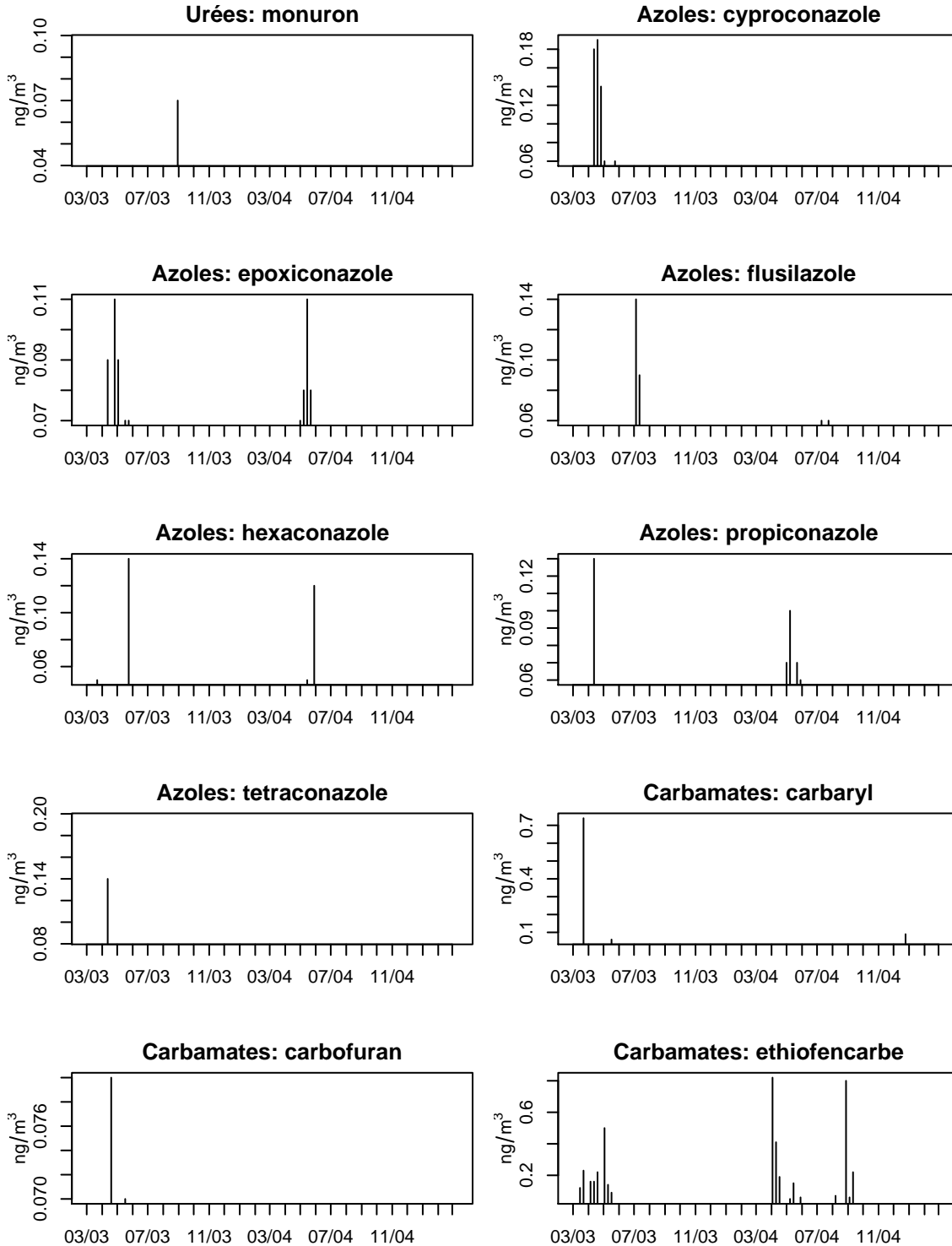


Figure 2.14 : Station de Courcelles (suite)

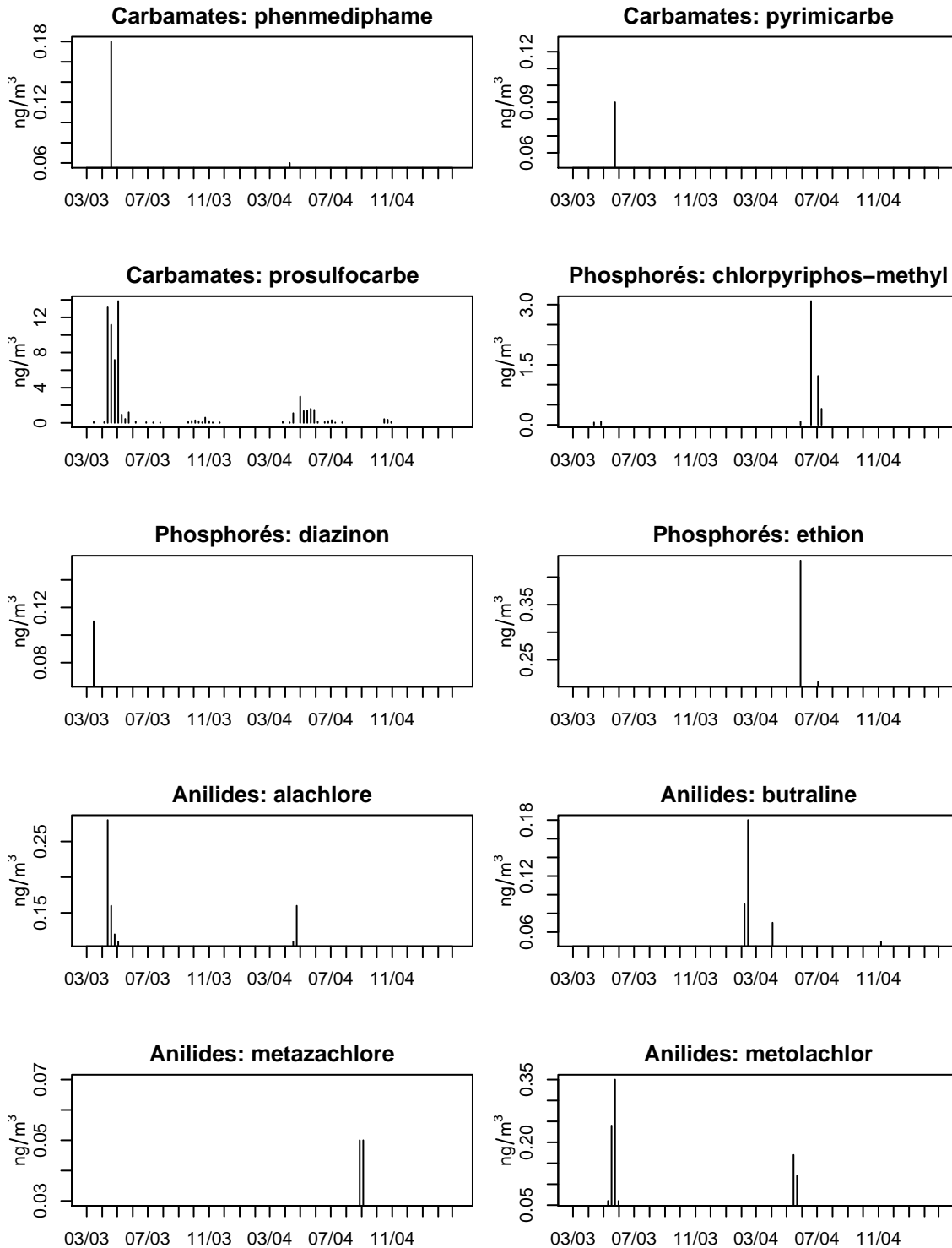


Figure 2.15 : Station de Courcelles (suite)

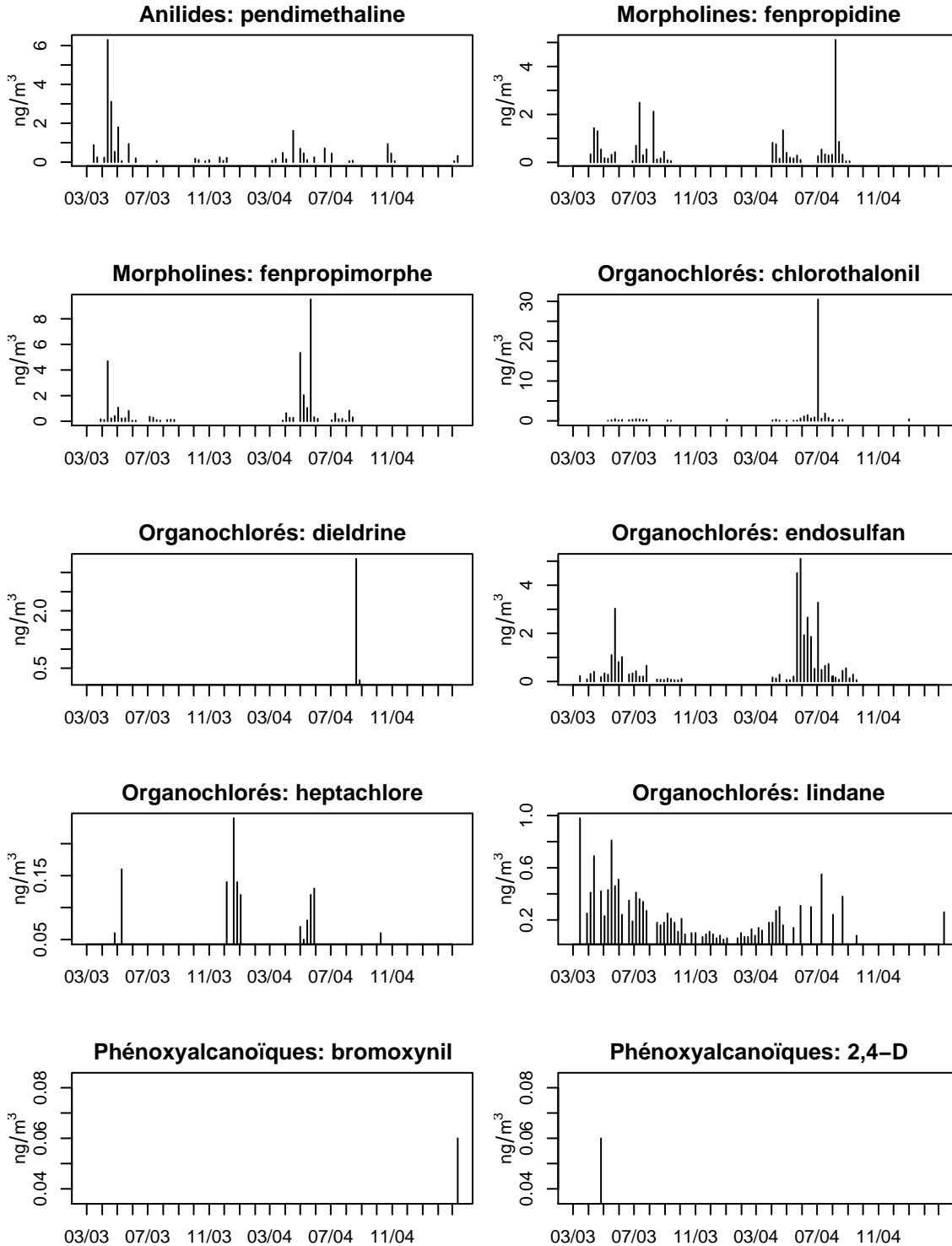


Figure 2.16 : Station de Courcelles (suite)

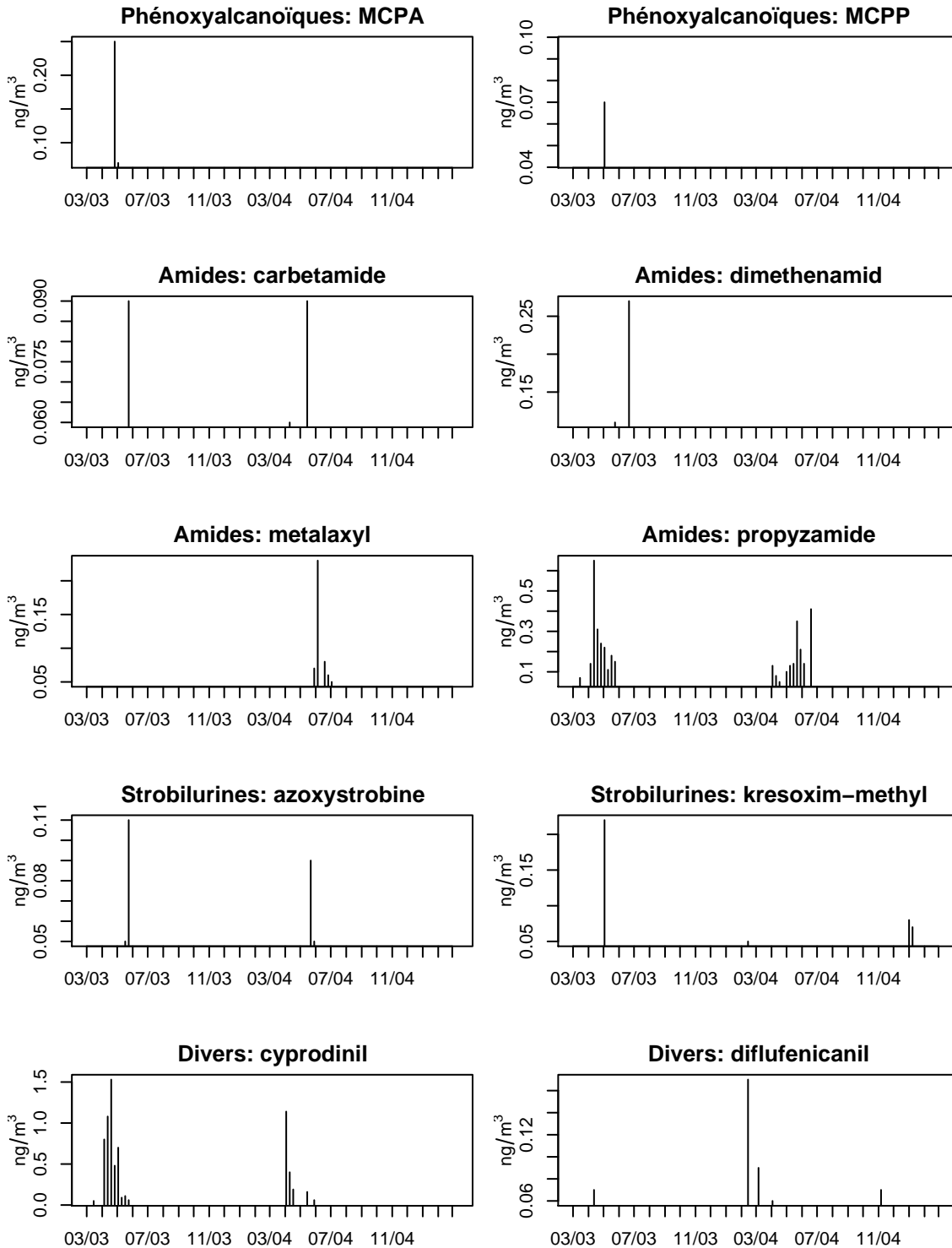


Figure 2.17 : Station de Courcelles (suite)

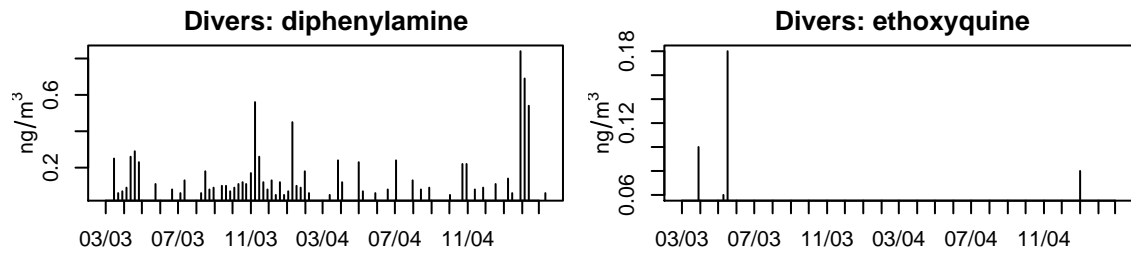
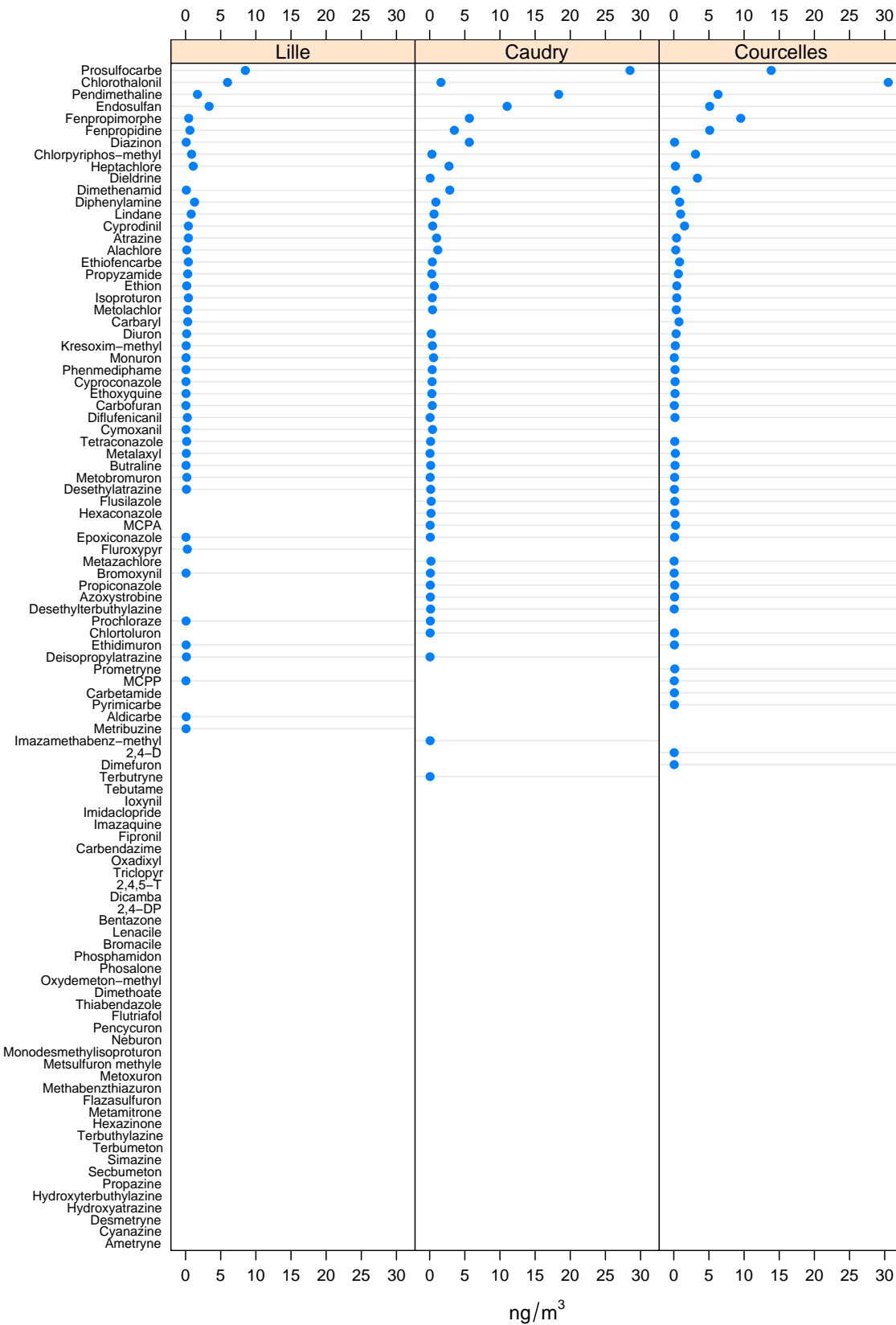


Figure 2.18 : Valeurs maximales observées pour les différentes substances selon le site de prélèvement



N.B. Les substances sans valeur maximale représentée n'ont pas été détectées sur le site concerné pendant la période d'étude.

3 Caractérisation de l'impact sanitaire des pesticides présents dans l'atmosphère : étude de faisabilité

3.1 Objectifs

Pour caractériser l'impact sanitaire de substances présentes dans l'environnement, il convient d'appliquer la démarche de l'évaluation des risques sanitaires développée aux Etats-Unis [48] et adoptée en France, en particulier pour le volet sanitaire des études d'impact [49, 50]. Cette démarche repose sur l'utilisation :

- des meilleures données toxicologiques et épidémiologiques disponibles, pour caractériser le danger potentiel des substances étudiées et modéliser les relations entre dose et effet sur l'organisme ; les résultats de cette étape prennent le plus souvent la forme de Valeurs Toxicologiques de Référence (VTR) ;
- des données représentatives de l'exposition des différents groupes de population, en particulier des groupes sensibles (enfants) ;

afin de pouvoir caractériser l'impact sanitaire dans la population étudiée. Cette étape de caractérisation doit également examiner la sensibilité des résultats présentés aux hypothèses faites aux différentes étapes de la démarche.

Notre objectif initial dans ce travail était d'envisager la faisabilité d'utiliser les données issues du programme *PHYTO AIR* pour examiner la contribution des concentrations de pesticides dans l'air à l'exposition de la population de la région aux pesticides et d'évaluer le risque sanitaire associé à cette exposition.

Au cours de cette démarche, il nous est apparu que plusieurs difficultés empêchaient de véritablement pouvoir caractériser l'exposition aux pesticides et son impact sur la santé :

- le programme *PHYTO AIR* avait avant tout un objectif de détection : les données produites ne permettent pas de caractériser de manière représentative l'exposition de la population de la région aux pesticides présents dans l'air ;
- les bases de données consultées pour rechercher des VTR font apparaître d'importantes lacunes en ce qui concerne l'effet des pesticides introduits dans l'organisme par inhalation ;
- les données d'apport par l'ingestion, indispensables pour examiner la contribution des différentes voies d'apport sont très lacunaires : si des données issues de la surveillance des eaux de distribution sont disponibles dans la région, nous avons cruellement manqué de données concernant les apports par l'alimentation.

Nous avons donc abandonné notre stratégie initiale, qui s'est avérée impraticable, pour nous tourner vers une démarche visant à permettre au lecteur de situer les valeurs mesurées dans l'atmosphère par rapport aux données toxicologiques disponibles. Pour cela, nous avons gardé les principes de la démarche d'évaluation des risques mais nous les avons appliqués de manière simplifiée avec un objectif de détection similaire à la philosophie du programme *PHYTO AIR*.

Notre objectif était donc de répondre à la question : comment se situent, en terme d'impact sanitaire, les apports par inhalation par rapport aux apports par ingestion ? Pour cela, nous avons construit des scénarios d'exposition avec des valeurs majorantes pour les 3 types d'apports étudiés : air, eau et alimentation et nous avons examiné la contribution respective de ces 3 apports. En l'absence de données sur la contamination des sols superficiels en pesticides hors zones agricoles, nous n'avons pu considérer la voie d'exposition par l'ingestion de poussières contaminées.

D'autre part, nous avons cherché à répondre à une deuxième question : comment se situent les valeurs mesurées dans l'atmosphère par rapport aux références toxicologiques disponibles ? Dans un objectif de précaution, nous avons alors utilisé les valeurs maximales mesurées que nous avons comparées à des VTR par inhalation dérivées des données disponibles par ingestion, selon la méthode proposée par l'EPA [51].

3.2 Méthodes

3.2.1 Apports par les différentes voies d'exposition : la contribution de l'air

Quantification des apports

Pour étudier l'importance de l'inhalation dans les apports totaux en pesticides, nous avons quantifié les apports en pesticides par les différentes voies d'exposition. Pour ce calcul, il faut prendre en compte plusieurs paramètres : le taux d'administration de chaque voie, le temps d'exposition au milieu et les teneurs dans ces milieux.

Ainsi, pour le milieu i et la voie j , la dose externe journalière est E_{ij} :

$$E_{ij} = C_i \cdot Q_{ij} \cdot T_i / T_e$$

où :

- C_i est la concentration dans le milieu i ;
- Q_{ij} est la quantité de milieu i administrée par la voie j par jour ;
- T_i est le nombre d'heures passées dans le milieu i par jour ;
- T_e est le nombre total d'heures d'exposition, en heure par jour (soit 24 heures pour l'air).

Pour l'alimentation et l'eau, le calcul est simplifié :

$$E_{ij} = C_i \cdot Q_{ij}$$

La somme totale des apports ingérés est la somme des différentes expositions. Nous avons donc comparé la dose apportée par chaque voie d'exposition à la dose totale. La voie cutanée n'a pas été prise en compte car elle a été considérée comme négligeable pour la population générale.

Scénarios d'exposition

Pour des raisons de cohérence dans nos différents calculs, nous nous sommes basés sur les valeurs maximales de concentration car pour l'alimentation, les données disponibles représentent les Apports Journaliers Maximums Théoriques (AJMT) dont le calcul est basé sur les valeurs de LMR et non pas sur des valeurs réellement mesurées dans les aliments. Ainsi, pour les valeurs de concentration dans l'air, nous avons utilisé les valeurs maximales mesurées sur les 3 stations du programme *PHYTO AIR* et pour l'eau, nous avons utilisé les données communiquées par la DRASS et concernant les eaux superficielles et souterraines sur la période 1999-2004, en retenant les valeurs maximales. Pour l'alimentation, nous avons utilisé les résultats de l'étude du CREDOC [36] qui bien qu'ancienne, a l'avantage d'estimer directement la dose journalière ingérée. Il s'agit d'apport journalier maximum théorique. Les pesticides retenus pour cet exercice sont ceux pour lesquels les concentrations étaient disponibles à la fois pour l'air et pour l'alimentation. Pour l'eau, quand la valeur n'était pas disponible car pas détectée, nous avons appliqué comme valeur la moitié du seuil de détection. Pour les paramètres physiologiques, nous avons utilisé ceux proposés par US-EPA [52], soit :

- quantité d'air inhalée : 15,2 m³ par jour pour un adulte ;
- quantité d'eau ingérée : 1,4 L par jour.

Pour l'inhalation, nous avons considéré une exposition 24 heures sur 24. En l'absence de données sur la quantité de pesticides ingérés par l'alimentation pour les enfants, les calculs n'ont été faits que pour les adultes. Les hypothèses choisies pour ce calcul sont volontairement majorantes : utilisation des valeurs maximales de concentration, quantité ingérée basée sur les LMR et exposition aux pesticides dans l'air 24h/24. Par ailleurs, afin de tester la sensibilité de nos

estimations au choix des scénarios, nous avons calculé les apports journaliers en considérant un scénario où les apports par l'alimentation représentent 10 % des AJMT, nous basant sur les résultats de l'étude de l'alimentation totale française [53] qui a montré que sur les 10 pesticides étudiés, les apports en pesticides par la ration alimentaire représentaient au maximum 10 %.

3.2.2 Comparaison des concentrations dans l'air aux VTR

Cette étape a consisté à comparer les concentrations observées dans l'air à des Valeurs Toxicologiques de Références (VTR).

Valeurs Toxicologiques de Référence

Les VTR sont des indices qui établissent la relation entre une dose externe d'exposition à une substance toxique et la survenue d'un effet nocif [51]. Elles sont utilisées pour caractériser les risques sanitaires encourus par la population. Les VTR disponibles ont été établies par des instances internationales (OMS, IARC) ou nationales (ATSDR, US EPA, RIVM, Health Canada).

Pour un même toxique et pour une même voie de pénétration dans l'organisme, leurs valeurs numériques peuvent être parfois différentes en fonction du corpus d'études animales ou épidémiologiques à partir duquel elles ont été établies, de la méthode utilisée pour extrapoler vers les faibles doses les observations faites à hautes doses d'exposition et des facteurs de sécurité utilisés.

VTR des effets à seuil Un effet avec seuil est défini comme un effet qui survient au delà d'une certaine dose administrée. Il existe des VTR pour la voie orale (ingestion) et pour la voie respiratoire (inhalation). Selon la source, les appellations sont variables, pour la voie orale :

- « Doses Journalières Admissibles (DJA) » élaborées par l'OMS, le RIVM ou Santé Canada ;
- *Reference Doses* (RfD), élaborées par l'US-EPA ;
- *Minimal risk levels* (MRL), élaborés par l'ATSDR ;

et pour la voie respiratoire :

- Concentrations Admissibles dans l'Air (CAA), de l'OMS ;
- *Reference Concentrations* (RfC), élaborées par l'US-EPA ;
- *Minimal Risk Levels* (MRL), élaborés par l'ATSDR.

VTR des effets sans seuil Un effet sans seuil est un effet qui apparaît quelle que soit la dose reçue : c'est alors la probabilité de survenue de l'effet qui croît avec la dose. Comme pour les VTR sans seuil, il existe différentes appellations selon l'organisme. On parle d'Excès de Risque Unitaire (ERU) pour la voie orale ou l'inhalation (OMS) ou de *slope factor* ou encore d'*Air Unit Risk*, respectivement pour la voie orale et l'inhalation (US-EPA). L'excès de risque unitaire correspond à la probabilité supplémentaire, par rapport à un sujet non exposé, qu'un individu contracte un cancer s'il est exposé pendant sa vie entière à une unité de concentration de la substance considérée. L'excès de risque individuel pour une concentration donnée est calculé en multipliant l'excès de risque unitaire par la concentration considérée.

Bases consultées

TOXNET (<http://toxnet.nlm.nih.gov/>) Contient HSDB, IRIS, ITER, GENETOX, CCRIS, TOXLINE, DART, TRI, CHEMIDPLUS.

AGRITOX Base de données sur les substances actives phytopharmaceutiques de l'INRA (<http://www.inra.fr/agritox/>). « Les données essentielles à l'évaluation sont regroupées dans un tableau qui comporte le nom de la substance, la DJA, l'ARfD, l'AOEL, la PNEC et le classement » (<http://www.inra.fr/agritox/php/donnees-essentielles.php>). Les Doses Journalières Admissibles reprises dans la base de données AGRITOX sont celles fixées soit par la commission française d'étude de la toxicité des produits antiparasitaires à usage agricole soit par la Commission de l'union européenne, soit par des instances internationales (FAO/OMS, EPA).

IRIS Integrated Risk Information System. Base de données de l'EPA, l'Agence Américaine de l'environnement (<http://www.epa.gov/iris/>).

IPCS International Program of Chemical Safety from Intergovernmental Organizations (<http://www.inchem.org/>).

RIVM Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu. Base de données Néerlandaise (<http://www.rivm.nl/>).

ATSDR Agency for Toxic Substance and Disease Registry, agence fédérale américaine de Santé publique (<http://www.atsdr.cdc.gov/>).

CCRIS Chemical Carcinogenesis Research Information System (<http://toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/htmlgen>).

Expression des comparaisons

L'expression de la comparaison des concentrations observées dans l'air aux VTR que nous avons utilisée est tirée de la démarche d'évaluation des risques qui caractérise un effet avec seuil par le Ratio de danger (Rd) et un effet sans seuil par un Excès de Risque Individuel (ERI). Pour l'inhalation, les calculs sont les suivants :

$$Rd = C/CAA$$

$$ERI = C \times ERU$$

où :

- C est la concentration mesurée dans l'air, en ng/m^3 ;
- CAA est la concentration admissible dans l'air, en ng/m^3 ;
- ERU est l'excès de risque unitaire par inhalation, en $(ng/m^3)^{-1}$;
- ERI est l'excès de risque individuel.

3.2.3 Transposition des voies d'exposition pour les VTR

Pour permettre l'utilisation de VTR dans des conditions d'exposition différentes, des méthodes de transposition de voie d'exposition à une autre ont été admises dans la communauté scientifique [51]. Dans la liste des pesticides étudiés dans l'étude *PHYTO AIR*, rares sont ceux pour lesquels on dispose d'une VTR pour la voie d'exposition respiratoire. L'EPA a développé des techniques simplifiées pour construire des VTR pour la voie respiratoire à partir de VTR pour la voie orale. Pour transposer de la voie orale à la voie respiratoire, un certain nombre de critères doivent être respectés :

- l'effet adverse considéré pour le calcul de la VTR doit être identique à celui observé par voie orale ; cela implique que les effets après inhalation doivent être connus même s'ils ne sont pas quantifiés ;
- la transposition de voie impose de ne considérer que les produits générant des effets toxiques à distance du point de contact.

Sous l'hypothèse que la voie d'exposition n'influence pas le comportement de la substance dans l'organisme vis-à-vis des effets et que le taux d'absorption par voie digestive et par inhalation sont de 100 %, on peut ainsi convertir :

- pour un effet non cancérigène :

$$CAA_D = DJA \times (P/V_{Air})$$

- et pour un effet sans seuil :

$$ERU_D = (ERU_O/P) \times V_{Air}$$

où :

- CAA_D est la concentration admissible dérivée dans l'air ;
- DJA est la dose journalière admissible pour une exposition par voie orale ;

- ERU_D est l'excès de risque unitaire dérivé pour une exposition par inhalation ;
- ERU_O est l'excès de risque unitaire pour une exposition par ingestion ;
- P et V_{Air} sont des paramètres physiologiques, respectivement le poids corporel et la quantité d'air inhalée.

Pour nos calculs, nous avons repris les paramètres physiologiques proposés par l'EPA pour dériver les VTR soit pour la quantité d'air inhalé 15,2 m³/jour et pour le poids 70 kg.

3.3 Résultats

3.3.1 Apports des différentes voies

La dose totale estimée de pesticides ingérés et inhalés n'a pu être calculée que pour 20 pesticides, en raison du peu de données disponibles. Dans le scénario où l'on a utilisé les AJMT pour l'alimentation et les valeurs maximales mesurées dans l'air et dans l'eau, la dose totale d'exposition varie de 0,8 µg/jour à 533,8 µg/jour selon la substance (tableau 3.1). De façon générale et avec les scénarios que nous avons retenus, l'alimentation représente plus de 95 % des apports totaux journaliers, à l'exception du cyproconazole pour lequel l'alimentation représente 90 % et l'eau environ 9 %. La part de l'air dans l'exposition est très faible, elle représente pour la majorité des substances étudiées moins de 1 %. Dans le cas d'un scénario où la dose de pesticides apportée par l'alimentation représente 10 % des AJMT, la part de l'air dans l'exposition aux pesticides reste faible et représente au maximum 11 % pour l'heptachlore.

3.3.2 Recherche des VTR

En l'absence de norme sur les concentrations de pesticides dans l'air, l'étape suivante était de comparer les concentrations mesurées dans l'air à des VTR. La recherche de VTR a été réalisée seulement pour les pesticides détectés dans le programme *PHYTO AIR* (tableau 3.2). Pour 7 produits de notre liste (bromacil, diméthuron, éthidimuron, éthifencarbe, imazaméthabenz-méthyl, monuron et prosulfocarbe), aucune VTR n'a été trouvée dans les bases consultées. Par contre pour d'autres, plusieurs VTR étaient disponibles pour une même voie d'exposition (ingestion). Pour l'inhalation, les quelques VTR disponibles (5 pesticides seulement) ne sont pas des VTR élaborées à partir de données toxicologiques et épidémiologiques, mais sont des VTR dérivées par les organismes eux-mêmes à partir des VTR établies pour la voie d'exposition orale.

Sans que les critères aient pu être réellement vérifiés pour tous les produits étudiés et quand la VTR par inhalation n'était pas disponible, nous avons calculé une VTR dérivée pour chacune des substances mesurées

(dans la mesure où une VTR par ingestion existait) soit pour 51 substances. Quand plusieurs VTR par ingestion étaient disponibles pour une même molécule, nous avons choisi de préférence celle élaborée par l'Union Européenne. En cas d'absence, nous avons retenu celle fixée par la Commission des toxiques puis celle fournie par l'EPA (tableau 3.3). Le fait que les molécules soient considérées comme très toxiques se traduit par des VTR faibles comme pour la dieldrine et le lindane et à l'inverse, les molécules les moins toxiques ont des VTR élevées comme le fluroxypyr et le kresoxim-méthyl (figure 3.1)

3.3.3 Comparaison avec les VTR

La comparaison des concentrations mesurées dans le programme *PHYTO AIR* avec les VTR dérivées montre que les concentrations maximales observées sont largement inférieures aux VTR (tableau 3.4). Le Ratio de danger (Rd), permettant ici d'exprimer la comparaison des concentrations à la VTR reste bien inférieur à 1 et varie selon la substance, de $1,9 \times 10^{-2}$ pour la dieldrine à $8,9 \times 10^{-8}$ pour le fluroxypyr. Le chlorothalonil qui présente les plus fortes concentrations sur l'ensemble de la période d'étude n'est pas le produit qui présente le Rd le plus important car sa VTR est élevée. Les Rd les plus élevés sont observés pour la dieldrine et le lindane, en raison de leur forte toxicité (figure 3.2). Pour 15 substances, notre stratégie de sélection des VTR ne nous a pas conduit à retenir les plus pénalisantes. Cependant, si pour ces substances (le 2,4-D, l'atrazine, le carbofuran, le chlorpyrifos-méthyl, le diuron, l'endosulfan, l'éthion, l'heptachlore, le MCPA, le MCPP, le metalaxyl, la pendiméthaline, le prochloraz, le propiconazole et la propyzamide) nous avons retenu la VTR la plus pénalisante, les Ratios de danger seraient encore inférieurs à 1, variant de $7,8 \times 10^{-3}$ à $1,7 \times 10^{-6}$. En ce qui concerne les effets sans seuil, le calcul du *risque vie entière par inhalation* a été fait pour les substances pour lesquelles on disposait de VTR sans seuil soit la dieldrine, l'heptachlore et le prochloraz. Pour la dieldrine, l'excès de risque calculé pour une exposition *vie entière* est de $1,5 \times 10^{-5}$, autrement dit, dans une population de 100 000 personnes exposées toute leur vie, 24 heures sur 24 à une concentration de 3,36 ng/m³ (valeur maximale observée sur les 3 stations) 1,5 d'entre elles développeraient un cancer. Pour l'heptachlore, l'excès de risque individuel est de 3,6 pour 1 million et pour le prochloraz il est de 4,3 pour 1 milliard.

3.4 Discussion

Notre objectif initial dans ce travail était d'étudier la possibilité d'utiliser les données du programme *PHYTO AIR* pour examiner la contribution des concentrations de pesticides dans l'air à l'exposition de la population. Les contraintes méthodologiques liées à l'ap-

plication de la méthode classique d'évaluation des risques à la problématique des pesticides nous ont conduits à revoir nos objectifs et, d'une part à situer la voie d'exposition par inhalation par rapport aux autres voies d'exposition, et d'autre part à rapporter les concentrations observées à une échelle de valeurs sanitaires. Malheureusement, même ces objectifs plus restreints se sont avérés difficiles à atteindre en raison du peu de données disponibles sur les milieux et particulièrement, en ce qui concerne les apports alimentaires mesurés en population française, sur les VTR par inhalation et sur l'estimation de l'exposition aux pesticides dans l'air. Malgré les limites de l'exercice, les résultats nous permettent de porter un jugement global sur les valeurs observées, qui sont relativement faibles. Les ratios de danger calculés sont largement inférieurs à 1. D'autre part, nos résultats mettent en évidence le déficit de données quant à l'exposition totale aux pesticides.

Nos résultats concernant les différentes voies d'exposition sont cohérents avec les observations de l'Organisation Mondiale de la Santé qui estime que la contamination des aliments par les pesticides est la voie d'exposition majoritaire en population générale [15]. Sauf exception et dans des scénarios où nous avons maximisé les apports des trois voies, 90 % de l'exposition est attribuable à l'alimentation et 10 % à l'eau. Dans les estimations de l'OMS, la part de l'air, jugée minoritaire dans l'exposition, n'avait pas été prise en compte.

Nous avons dérivé les VTR par ingestion sans pouvoir formellement vérifier les critères établis par l'EPA, et nos calculs ont plutôt un caractère indicatif. Pour le propiconazole par exemple, qui est un irritant gastrique lorsqu'il est ingéré, le critère qui impose de ne considérer que les produits générant des effets

toxiques à distance du point de contact n'est pas respecté. D'après nos estimations, qui en raison de la méthodologie employée sont à considérer avec précaution, l'exposition aux pesticides dans l'air ambiant ne semble pas présenter de risque pour la santé en ce qui concerne les effets avec seuil, ceci d'autant plus que le scénario choisi majore l'exposition puisque d'une part on considère que les personnes sont exposées 24 heures sur 24 et d'autre part les valeurs de concentration retenues pour ce calcul sont des valeurs maximales. Les VTR utilisées pour calculer l'excès de risque vie entière sont des valeurs extrapolées soit directement par les organismes pour la dieldrine et l'heptachlore soit par nos soins pour le prochloraze. Pour les substances cancérigènes, on considère en général qu'un excès de risque individuel de cancer *vie entière* inférieur ou égal à 10^{-6} est acceptable. Cette valeur n'est dépassée que pour la dieldrine. Cependant l'effet cancérigène de la dieldrine fait débat. L'IARC déclare qu'il existe des preuves insuffisantes de la cancérogénicité chez l'homme et des preuves limitées de la cancérogénicité chez les animaux d'expérience et, en conséquence, classe la dieldrine dans la catégorie 3 des substances pouvant être cancérigènes pour l'homme [18]. Par contre, aux Etats-Unis, l'Agence de Protection de l'Environnement (EPA) a classé la dieldrine comme substance cancérigène probable pour l'homme sur la base d'expériences provoquant le cancer du foie chez la souris mais pas chez le rat [54]. La dieldrine a été interdite pour un usage agricole dans les pays de l'Union Européenne en 1988 et retirée du marché en France en 1989 [55]. Dans le programme *PHYTO AIR* elle a été détectée 1 fois à Caudry au cours de la période d'étude et 2 fois à Courcelles. La valeur maximale a été mesurée sur la station de Courcelles. Le scénario envisagé pour estimer l'exposition à ce pesticide est donc très majorant et l'excès de risque individuel nettement surestimé.

Tableau 3.1 : Part des différentes voies dans l'exposition aux pesticides

Molécule	Dose journalière d'exposition						Total (µg/j)
	Air		Alim		Eau		
	(µg/j)	%	(µg/j)	%	(µg/j)	%	
Aldicarbe	0,001	0,010	10,3	100,0	0,001	0,010	10,3
Atrazine	0,015	0,044	33,0	96,6	1,148	3,363	34,1
Carbaryl	0,011	0,002	533,8	100,0	0,001	0,000	533,8
Carbofuran	0,006	0,021	28,4	100,0	0,001	0,004	28,4
Chlorothalonil	0,464	1,482	30,8	98,5	0,001	0,003	31,3
Chlorpyriphos-methyl	0,047	0,043	108,4	100,0	0,001	0,001	108,4
Cymoxanil	0,006	0,004	151,0	100,0	0,001	0,001	151,0
Cyproconazole	0,005	0,637	0,7	90,4	0,070	8,917	0,8
Diazinon	0,086	0,052	164,4	99,9	0,001	0,001	164,5
Diphenylamine	0,019	0,013	140,8	100,0	0,001	0,001	140,8
Endosulfan	0,168	0,054	313,2	99,9	0,001	0,000	313,4
Ethoxyquine	0,005	0,004	140,8	100,0	0,001	0,001	140,8
Flusilazole	0,003	0,022	13,4	100,0	0,001	0,007	13,4
Heptachlore	0,042	1,255	3,3	98,6	0,004	0,120	3,3
Hexaconazole	0,003	0,021	14,0	100,0	0,001	0,007	14,0
Metalaxyl	0,003	0,027	11,0	100,0	0,001	0,009	11,0
Phenmediphame	0,002	0,473	0,4	99,3	0,001	0,236	0,4
Prochloraze	0,002	0,048	4,1	99,9	0,001	0,024	4,1
Propiconazole	0,010	0,787	1,3	99,1	0,001	0,079	1,3
Propyzamide	0,001	0,007	15,1	100,0	0,001	0,007	15,1

Scénario : AJMT pour l'alimentation et valeurs maximales mesurées pour l'ingestion d'eau et l'inhalation

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
2,4 D	DJA	Orale	H R	0,05	2001	Agritox	UE Directive 01/103/CE
	RfD	Orale		0,01	1998	IRIS	
Alachlore	RfD	Orale	H	0,01	1993	IRIS	Décision de la commission des toxiques
	DJA	Orale		0,0005	1994	Agritox	
Aldicarbe	DJA	Orale	ICH	0,001	1994	Agritox	Décision de la commission des toxiques
	RfD	Orale		0,001	1993	IRIS	
	ADI	Orale		0,005	1982	IPCS	
Atrazine	RfD	Orale	C D	0,035	1993	IRIS	
	TDI	Orale		0,005	2000	RIVM	
Azoxystrobine	DJA	Orale	HP	0,1	1998	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Bromacile							
Bromoxynil	RfD	Orale	NE	0,02	1988	IRIS	UE Directive 04/58/CE
	DJA	Orale		0,01	2004	Agritox	
Butraline	DJA	Orale	REP D	0,003	2005	Agritox	Décision de la commission des toxiques

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Carbaryl	ADI	Orale	R HP	0-0,01	1985	IPCS	
	RfD	Orale		0,1	1988	IRIS	
	TDI	Orale		0,003	2000	RIVM	
	TCA	inhalation		10000 ng/m ³ (a)	2000	RIVM	La conversion VTR orale/respiratoire ne répond pas aux critères de l'EPA
Carbetamine	DJA	Orale		0,008	1997	Agritox	Décision de la commission des toxiques
	DJA	Orale	REP D	0,021	2005	Agritox	décision de la commission des toxiques
Carbofuran	RfD	Orale	ICH REP	0,005	1987	IRIS	
	TDI	Orale		0,002	2000	RIVM	
	ADI	Orale		0,002	1999	Agritox	
Chlorothalonil	RfD	Orale	R	0,015	1988	IRIS	
	ADI	Orale		0-0,03	1992	IPCS	
Chlorpyrifos-methyl	MLR	Orale	ICH	0,001	1997	ATSDR	Pour le chlorpyrifos
	RfD	Orale		0,003	1997	IRIS	Pour le chlorpyrifos
	DJA	Orale		0,01	2005	Agritox	
chlortoluron	DJA	Orale	HP H D	0,04	2005	Agritox	Décision de la commission des toxiques

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Cymoxanil	DJA	Orale	NE	0,016	1999	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Cyproconazole	DJA	Orale	NE	0,01	2002	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Cyprodinil	DJA	Orale	R HP PE	0,03	2005	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Diazinon	MLR int	Inhalation	ICH	9000 ng/m ³ (a)	1996	ATSDR	Intermediate duration exposure
	MLR int	Orale		0,0002	1996	ATSDR	Intermediate duration exposure
	ADI	Orale		0,002	1994	IPCS	FAO/OMS
Dieldrine	RfD	Orale	HP	0,00005	1990	IRIS	
	SF	Orale		1,6	1993	IRIS	
	Drinking water Unit risks			0,00046 µg/L	1993	IRIS	
	Air unit risks	Inhalation		0.0000046 ng/m ³ (a)	1993	IRIS	
	MLR chronic	Orale		0,00005	2002	ATSDR	
Diflufenicanil	TCA	inhalation		350 ng/m ³ (a)	2000	RIVM	
	TDI	Orale		0,0001	2000	RIVM	N'est pas utilisé seul mais en association avec d'autres substances. Pas de DJA
Dimefuron							

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Dimethenamid	DJA	Orale	NE	0,02	2004	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Diphenylamine	RfD	Orale	D	0,025	1986	IRIS	
	DJA	Orale		0,08	1998	Agritox	FAO/OMS
Diuron	RfD	Orale	H	0,002	1988	IRIS	
	DJA	Orale		0,007	2005	Agritox	
Endosulfan	RfD	Orale	D	0,006	1994	IRIS	
	DJA	Orale		0,006	1998	Agritox	FAO/OMS
	MLR chronic	Orale		0,002	2000	ATSDR	
Epoxiconazole	DJA	Orale	NE	0,005	1992	Agritox	
Ethidimuron							
Ethiofencarbe							
Ethion	RfD	Orale	ICH	0,0005	1989	IRIS	
	MLR chronic	Orale		0,0004	2000	ATSDR	
Ethoxyquine	DJA	Orale	REP	0,005	1998	Agritox	FOA/OMS
Fenpropidine	DJA	Orale	REP	0,005	1995	Agritox	Décision de la commission des toxiques

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Fenpropimorphe	DJA	Orale	REP	0,003	1999	Agritox	FAO/OMS
Fluroxypyr	DJA	Orale	R	0,8	1999	Agritox	UE Directive 00/10/CE
Flusilazole	RfD	Orale	HP	0,0007	1988	IRIS	
Glyphosate	RfD	Orale	R	0,1	1990	IRIS	
	DJA	Orale		0,3	2001	Agritox	UE Directive 00/99/CE
Heptachlore	RfD	Orale	HP	0,0005	1991	IRIS	
	SF	Orale		4,5	1993	IRIS	
	Drinking water Unit risks	Orale		0,00013 µg/L	1993	IRIS	
	Air unit risks	inhalation		0.0000013 ng/m ³ (a)	1993	IRIS	
	MLR int DJA	Orale Orale		0,0001 0,0005	2001 1970	ATSDR IPCS	JMPR
Hexaconazole	DJA	Orale	NE	0,005	1990	Agritox	JMPR
Imazamethabenz- methyl							
Isoproturon	DJA	Orale	HP H	0,015	2001	Agritox	UE Directive 02/18/CE
Kresoxim- methyl	DJA	Orale		0,4	1998	Agritox	UE Directive 99/1/CE

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Lindane	RfD	Orale	N R HP ICH	0,0003	1988	IRIS	
	TDI	Orale		0,00004	2000	RIVM	
	TCA	inhalation		140 ng/m ³ (a)	2000	RIVM	Valeur provisoire
	DJA	Orale		0,008	1989	IPCS	FAO/OMS
MCPA	RfD	Orale	R HP	0,0005	1991	IRIS	
	DJA	Orale		0,013	2005	Agritox	UE Directive 05/57/CE
MCPP	RfD	Orale	R	0,001	1990	IRIS	
	DJA	Orale		0,01	2005	Agritox	UE Directive 05/57/CE
Metalaxyl	RfD	Orale	C PE	0,06	1995	IRIS	
	DJA	Orale		0,03	1982	Agritox	FAO/OMS
Metazachlore	DJA	Orale	NE	0,036	1998	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Metobromuron							
Metolachlor	DJA	Orale	D	0,15	1994	IRIS	
Metribuzine	RfD	Orale	R HP D	0,025	1995	IRIS	
	DJA	Orale		0,013	1999	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Monuron							

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Oxydemeton-methyl	DJA	Orale	NE	0,0003	2003	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Pendimethaline	RfD	Orale	HP	0,04	1991	IRIS	
	DJA	Orale		0,125	2002	Agritox	UE Directive 03/31/CE
Phenmediphame	RfD	Orale	NE	0,25	1990	IRIS	
	DJA	Orale	H	0,03	2003	Agritox	UE Directive 04/58/CE
Prochloraze	RfD	Orale	HP	0,009	1989	IRIS	
	SF	Orale		0,15	1997	IRIS	
	Drinking water Unit risks	Orale		0,0000043µg/L	1997	IRIS	
	DJA	Orale		0,01	1988	Agritox	Décision de la commission des toxiques
Prometryne	DJA	Orale		0,01	1983	Agritox	FOA/OMS
	RfD	Orale	HP R D	0,004	1992	IRIS	
Propiconazole	RfD	Orale	IG	0,013	1992	IRIS	
	DJA	Orale	HP	0,04	2003	Agritox	UE Directive 03/70/CE
Propyzamide	RfD	Orale	Hp REP PE	0,075	1994	IRIS	
	DJA	Orale		0,085	2004	Agritox	Décision de l'Union Européenne
Prosulfocarbe							

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.2 : Les Valeurs Toxicologiques de Référence (suite)

Produit	Type de VTR	Exposition	Effets	VTR (mg/kg/jour)	Année	Source	Commentaires
Pyrimicarbe	DJA	Orale	NE	0,02	1982	Agritox	FAO/OMS
Terbutryne	RfD	Orale	H	0,001	1988	IRIS	
Tetraconazole	DJA	Orale	NE	0,015	1995	Agritox	Décision de la commission des toxiques

a : valeur dérivée de la VTR orale, UE : Union Européenne

C : Cardiovasculaire, D : Développement, H : Hématologique, R : Rénal N : Neurologique, ICH : Inhibiteur de la cholinestérase

NE : Non établi, REP : Fonction de reproduction, HP : Hépatique, PE : Perturbateur endocrinien, IG : irritant gastrique

Tableau 3.3 : Valeurs Toxicologiques de Référence dérivées pour l'inhalation

Molécule	VTR Inhalation dérivée (ng/m ³)		Source
	ERUi	CAA	
2,4 D		175 000	UE
Alachlore		1 750	CT
Aldicarbe		3 500	CT
Atrazine		122 500	EPA
Azoxystrobine		350 000	CT
Bromoxynil		35 000	UE
Butraline		10 500	CT
Carbaryl		10 000	RIVM
Carbetamine		73 500	CT
Carbofuran		17 500	EPA
Chlorothalonil		52 500	EPA
Chlorpyrifos-methyl		35 000	UE
Chlortoluron		140 000	CT
Cymoxanil		56 000	CT
Cyproconazole		35 000	CT
Cyprodinil		105 000	CT
Diazinon		9 000 (i)	ATSDR
Dieldrine	4,6×10 ⁻⁶ (i)	175	EPA
Dimethenamid		70 000	CT
Diphenylamine		87 500	EPA
Diuron		24 500	UE
Endosulfan		21 000	EPA
Epoconazole		17 500	CT
Ethion		1 750	EPA
Ethoxyquine		17 500	OMS
Fenpropidine		17 500	CT
Fenpropimorphe		10 500	OMS
Fluroxypyr		2 800 000	UE
Flusilazole		2 450	EPA
Glyphosate		350 000	EPA
Heptachlore	1,3×10 ⁻⁶ (i)	1 750	EPA
Hexaconazole		17 500	CT
Isoproturon		52 500	UE
Kresoxim-methyl		1 400 000	UE
Lindane		140 (i)	RIVM
MCPA		45 500	UE

ERUi : Excès de Risque Unitaire par inhalation (effets sans seuil)

CAA : Concentration Admissible dans l'Air (effets à seuil)

(i) : VTR inhalation issue d'une Base de données

Tableau 3.3 : Valeurs Toxicologiques de Référence dérivées pour l'inhalation (suite)

Molécule	VTR Inhalation dérivée (ng/m ³)		Source
	ERUi	CAA	
MCPPP		35 000	UE
Metalaxyl		210 000	EPA
Metazachlore		126 000	CT
Metolachlor		525 000	EPA
Metribuzine		45 500	CT
Oxydemeton-methyl		1 050	CT
Pendimethaline		437 500	UE
Phenmediphame		105 000	UE
Prochloraze	4,3×10 ⁻⁸	31 500	EPA
		35 000	CT
Prometryne		14 000	EPA
Propiconazole		140 000	UE
Propyzamide		297 500	UE
Pyrimicarbe		70 000	OMS
Terbutryne		3 500	EPA
Tetraconazole		52 500	CT

ERUi : Excès de Risque Unitaire par inhalation (effets sans seuil)

CAA : Concentration Admissible dans l'Air (effets à seuil)

(i) : VTR inhalation issue d'une Base de données

Tableau 3.4 : Comparaison des concentrations maximales de pesticides dans l'air aux valeurs toxicologiques de référence dérivées pour l'inhalation

Molécule	Max. 3 stations (ng/m ³)	VTR		Caractérisation du risque	
		CAA (ng/m ³)	ERUi (ng/m ³)	Rd	ERI
2,4-D	0,06	175 000		3,4×10 ⁻⁷	
Alachlore	1,15	1 750		6,6×10 ⁻⁴	
Aldicarbe	0,09	3 500		2,6×10 ⁻⁵	
Atrazine	0,99	122 500		8,1×10 ⁻⁶	
Azoxystrobine	0,11	350 000		3,1×10 ⁻⁷	
Bromoxynil	0,1	35 000		2,9×10 ⁻⁶	
Butraline	0,18	10 500		1,7×10 ⁻⁵	
Carbaryl	0,74	10 000		7,4×10 ⁻⁵	
Carbetamide	0,09	73 500		1,2×10 ⁻⁶	
Carbofuran	0,37	17 500		2,1×10 ⁻⁵	
Chlorothalonil	30,51	52 500		5,8×10 ⁻⁴	

ERUi : Excès de Risque Unitaire par inhalation (effets sans seuil)

CAA : Concentration Admissible dans l'Air (effets à seuil)

(Rd) : Ratio de danger

(ERI) : Excès de Risque Individuel

Tableau 3.4 : Comparaison des concentrations maximales de pesticides dans l'air aux valeurs toxicologiques de référence dérivées pour l'inhalation (suite)

Molécule	Max. 3 stations (ng/m ³)	VTR		Caractérisation du risque	
		CAA (ng/m ³)	ERUi (ng/m ³)	Rd	ERI
Chlorpyriphos-methyl	3,09	35 000		$8,8 \times 10^{-5}$	
Chlortoluron	0,1	140 000		$7,1 \times 10^{-7}$	
Cymoxanil	0,41	56 000		$7,3 \times 10^{-6}$	
Cyproconazole	0,34	35 000		$9,7 \times 10^{-6}$	
Cyprodinil	1,53	105 000		$1,5 \times 10^{-5}$	
Diazinon	5,64	9 000		$6,3 \times 10^{-4}$	
Dieldrine	3,36	175	$4,6 \times 10^{-6}$	$1,9 \times 10^{-2}$	$1,5 \times 10^{-5}$
Dimethenamid	2,86	70 000		$4,1 \times 10^{-5}$	
Diphenylamine	1,28	87 500		$1,5 \times 10^{-5}$	
Diuron	0,33	24 500		$1,3 \times 10^{-5}$	
Endosulfan	11,02	21 000		$5,2 \times 10^{-4}$	
Epoxiconazole	0,11	17 500		$6,3 \times 10^{-6}$	
Ethion	0,65	1 750		$3,7 \times 10^{-4}$	
Ethoxyquine	0,31	17 500		$1,8 \times 10^{-5}$	
Fenpropidine	5,11	17 500		$2,9 \times 10^{-4}$	
Fenpropimorphe	9,52	10 500		$9,1 \times 10^{-4}$	
Fluroxypyr	0,25	2 800 000		$8,9 \times 10^{-8}$	
Flusilazole	0,22	2 450		$9,0 \times 10^{-5}$	
Glyphosate	0,19	350 000		$5,4 \times 10^{-7}$	
Heptachlore	2,75	1 750	$1,3 \times 10^{-6}$	$1,6 \times 10^{-3}$	$3,6 \times 10^{-6}$
Hexaconazole	0,19	17 500		$1,1 \times 10^{-5}$	
Isoproturon	0,42	52 500		$8,0 \times 10^{-6}$	
Kresoxim-methyl	0,39	1 400 000		$2,8 \times 10^{-7}$	
Lindane	0,98	140		$7,0 \times 10^{-3}$	
MCPA	0,25	45 500		$5,5 \times 10^{-6}$	
MCPP	0,07	35 000		$2,0 \times 10^{-6}$	
Metalaxyl	0,23	210 000		$1,1 \times 10^{-6}$	
Metazachlore	0,19	126 000		$1,5 \times 10^{-6}$	
Metolachlor	0,41	525 000		$7,8 \times 10^{-7}$	
Metribuzine	0,07	45 500		$1,5 \times 10^{-6}$	
Pendimethaline	18,35	437 500		$4,2 \times 10^{-5}$	
Phenmediphame	0,36	105 000		$3,4 \times 10^{-6}$	
Prochloraze	0,1	31 500	$4,3 \times 10^{-8}$	$3,2 \times 10^{-6}$	$4,3 \times 10^{-9}$
Prometryne	0,14	14 000		$1,0 \times 10^{-5}$	
Propiconazole	0,13	140 000		$9,3 \times 10^{-7}$	
Propyzamide	0,65	297 500		$2,2 \times 10^{-6}$	
Pyrimicarbe	0,09	70 000		$1,3 \times 10^{-6}$	

ERUi : Excès de Risque Unitaire par inhalation (effets sans seuil)

CAA : Concentration Admissible dans l'Air (effets à seuil)

(Rd) : Ratio de danger

(ERI) : Excès de Risque Individuel

Tableau 3.4 : Comparaison des concentrations maximales de pesticides dans l'air aux valeurs toxicologiques de référence dérivées pour l'inhalation (suite)

Molécule	Max. 3 stations (ng/m ³)	VTR		Caractérisation du risque	
		CAA (ng/m ³)	ERUi (ng/m ³)	Rd	ERI
Terbutryne	0,06	3 500		$1,7 \times 10^{-5}$	
Tetraconazole	0,16	52 500		$3,0 \times 10^{-6}$	

ERUi : Excès de Risque Unitaire par inhalation (effets sans seuil)

CAA : Concentration Admissible dans l'Air (effets à seuil)

(Rd) : Ratio de danger

(ERI) : Excès de Risque Individuel

Figure 3.1 : VTR dérivées

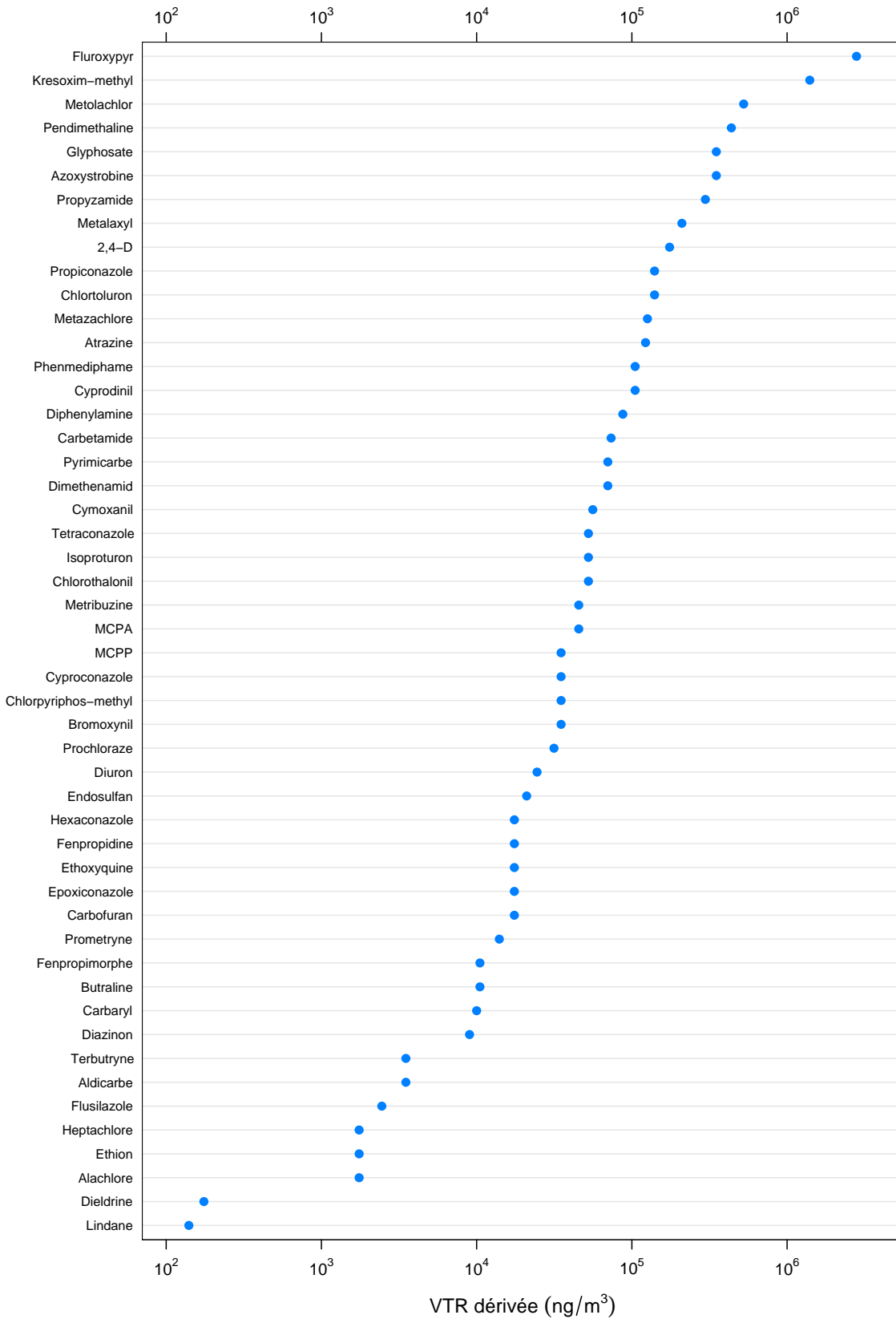
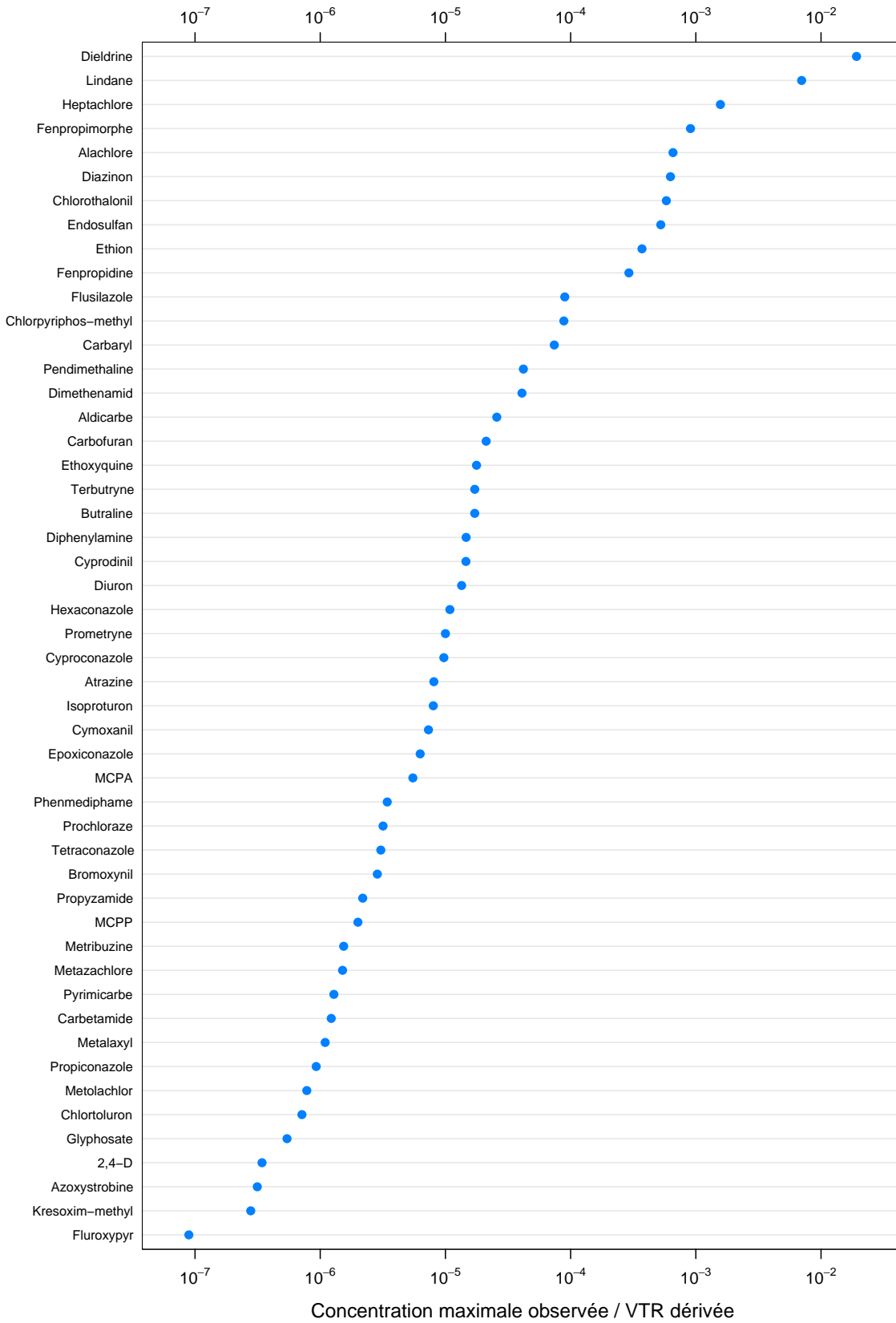


Figure 3.2 : Comparaison des concentrations dans l'air aux VTR dérivées



4 Synthèse et recommandations

Les mesures de concentrations de pesticides dans l'air réalisées dans le cadre du programme *PHYTO AIR* entre mars 2003 et mars 2005 ont permis de détecter la présence de 62 des 99 molécules mesurées. En particulier, des molécules dont l'usage agricole est interdit (lindane et dieldrine) ont pu être détectées. D'autre part, l'analyse des variations temporelles des concentrations atmosphériques révèle que certaines molécules ont pu être détectées en dehors de leur période d'épandage.

Les concentrations mesurées sont du même ordre de grandeur que celles observées dans des campagnes de mesure similaires dans d'autres régions françaises [42] mais nettement inférieures à ce qui a pu être observé dans des zones agricoles exposées en Californie [27]. Ces concentrations sont également inférieures à ce qui a pu être mesuré à l'intérieur de logements [56] ou, bien évidemment, au cours de l'utilisation professionnelle des produits.

Avec ces données, nous avons construit, des scénarios d'exposition humaine majorants en ce qui concerne les apports par inhalation, en utilisant les valeurs maximales observées. Cependant, même avec ces scénarios majorants, les apports estimés par inhalation restent faibles par rapport aux apports par l'alimentation : nos calculs conduisent à estimer une part des apports par inhalation représentant au plus quelques pour-cent. D'autre part, les ratios de danger et les excès de risques calculés en comparant les valeurs maximales mesurées dans l'atmosphère à des valeurs toxicologiques de référence dérivées pour l'inhalation conduisent à estimer que l'impact sanitaire associé à ces concentrations est probablement faible, à l'exception de quelques molécules comme le lindane et la dieldrine.

Ces résultats doivent cependant être interprétés avec précaution car nous avons été confrontés à de nombreuses difficultés dans l'exercice auquel nous nous sommes livrés. Tout d'abord, même si le choix des molécules analysées dans le programme *PHYTO AIR* était large, les contraintes techniques, logistiques et financières de l'échantillonnage et de la mesure des pesticides ont conduit à ne retenir que 3 stations de prélèvement. La recherche de pesticides par échantillonnage permet d'estimer l'exposition de la population aux pesticides dans l'air ambiant. Ces stations étaient situées dans des environnements différents mais ne peuvent prétendre représenter l'hétérogénéité des situations d'exposition de la population de la région, et en particulier de caractériser l'exposition des groupes

de population les plus exposés, par exemple les agriculteurs et leur famille. D'autre part, les mesures réalisées à l'extérieur ne permettent pas d'estimer les concentrations à l'intérieur des locaux, qui peuvent être nettement plus importante : l'étude MNCPE (Minnesota Children's Pesticides Exposure Study) a ainsi mesuré des concentrations de chlorpyrifos 200 fois plus importantes à l'intérieur des logements qu'à l'extérieur [56]. Nos résultats ne concernent donc que la population générale, sans exposition spécifique, et les concentrations atmosphériques ambiantes mesurées à l'extérieur.

D'autre part, notre travail nous a conduit à montrer la nette prépondérance des apports alimentaires dans l'exposition de la population générale aux pesticides. Cependant, il existe très peu de données sur les apports alimentaires de pesticides de la population française, et aucune donnée régionale. Nous nous sommes donc trouvés dans la situation paradoxale de disposer de données relativement détaillées sur les concentrations de pesticides dans l'atmosphère, donc en rapport avec une voie d'apport sans doute relativement marginale, alors que pour la voie d'apport prépondérante, l'alimentation, nous n'avions quasiment pas de données, ce qui nous a conduit à nous baser sur des apports maximaux théoriques journaliers basés sur les LMR. Or, l'étude de Leblanc a montré que pour les 6 pesticides détectés sur les 10 recherchés dans des rations alimentaires, les apports journaliers moyens ne dépassaient pas 10 % de la DJA [53, 57]. C'est ce qui nous a conduit à utiliser des scénarios alternatifs basés sur une proportion des apports maximaux théoriques journaliers plus en accord avec les données disponibles pour quelques molécules. Mais, cette situation est d'autant plus difficile que, par ailleurs, et cela assez logiquement, la documentation toxicologique disponible concerne quasiment exclusivement les effets des pesticides apportés par l'ingestion. Cela nous a conduit à calculer des valeurs toxicologiques de référence dérivées pour les apports par inhalation afin de disposer d'une échelle de référence pour les concentrations mesurées dans l'atmosphère. De plus, les synergies d'action des différentes molécules et donc l'effet toxique cumulé de l'exposition à plusieurs molécules n'a pas pu être pris en compte.

Ces limites ne nous paraissent pas devoir remettre fondamentalement en cause notre conclusion sur le caractère très modéré des concentrations mesurées. Cependant, l'exercice auquel nous nous sommes livrés a surtout pour mérite de montrer les efforts qui devraient être entrepris pour caractériser de manière

fiable et transparente l'exposition de la population de la région aux pesticides et caractériser l'impact sanitaire associé.

Il nous paraît nécessaire de pouvoir disposer de données spatialisées d'usage des produits qui, associées à des données sur les pratiques agricoles (recensement agricole, imagerie satellitaire) pourraient permettre de construire un réel cadastre des usages de pesticides dans la région. Cet outil permettrait à la fois de guider le choix des molécules à mesurer et la localisation des campagnes de mesures. Des études complémentaires de terrain sur le transfert des molécules dans l'atmosphère devraient alors permettre d'estimer les facteurs d'émission des différentes pratiques de culture et d'usage des pesticides et d'élaborer un cadastre d'émissions des molécules, voire de modéliser les concentrations de pesticides dans l'atmosphère sur le territoire régional. Les travaux réalisée en Californie ont confirmé la faisabilité de ce type d'approche [27]. L'étude de l'exposition ambiante devrait être complétée par des mesures de l'exposition à l'intérieur des logements (mesures dans l'air intérieur

et dans la poussière de maison), en prenant garde à échantillonner des logements reflétant la diversité des situations d'exposition (ménages d'agriculteurs).

Comme nous l'avons déjà mentionné, notre analyse de la contribution des différentes voies dans l'exposition globale aux pesticides a confirmé le caractère prépondérant des apports alimentaires. Or, actuellement, en France, on dispose de peu de données sur les apports en pesticides par une ration alimentaire. Pour caractériser de manière fiable l'exposition de la population, il nous paraît donc indispensable de disposer de données représentatives et fiables sur les apports de pesticides par l'alimentation.

Enfin, les connaissances sur les effets sur la santé des pesticides doivent être développées. Comme le recommandait le Comité de la Prévention et de la Précaution en 2002 [15], il faut *encourager les études épidémiologiques, toxicologiques et biologiques afin de progresser dans la connaissance des impacts sanitaires de pesticides tant en ce qui concerne les matières actives seules que leurs mélanges et les divers co-formulants qui les accompagnent.*

Références

- [1] Multigner L. Effets retardés des pesticides sur la santé humaine. *Environnement, Risques & Santé* 2005 ; 3 :187-194.
- [2] Directive 91/414/CEE du Conseil du 15 juillet 1991 concernant la mise sur le marché des produits phytopharmaceutiques. Texte consolidé. *Journal Officiel des Communautés Européennes* n° L 001 du 1er janvier 2001 (http://europa.eu.int/eur-lex/fr/consleg/pdf/1991/fr_1991L0414_do_001.pdf).
- [3] Directive 98/8/CE du Conseil du 16 février 1998 concernant la mise sur le marché des produits biocides. *Journal Officiel des Communautés Européennes* n° L 123 du 24 avril 1998 (<http://europa.eu.int/eur-lex/lex/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=CELEX:31998L0008:FR:HTML>.)
- [4] *Bilan des modalités de surveillance de la contamination par les produits phytosanitaires de l'eau et des denrées alimentaires*. Rennes : Ecole Nationale de Santé Publique ; 2001.
- [5] Inra, Cemagref. Pesticides, agriculture et environnement. *Réduire l'utilisation des pesticides et en limiter les impacts environnementaux*. Expertise scientifique collective. Synthèse du rapport d'expertise 2005.
- [6] Baldi I, Mohammed-Brahim B, Brochard P, Dartigues JF, Salamon R. Effets retardés des pesticides sur la santé : état des connaissances épidémiologiques. *Rev Epidemiol Sante Publique* 1998 ; 46 : 134-42.
- [7] Fontan J. *Les pollutions de l'air. Les connaître pour les combattre*. Paris : Vuibert ; 2003.
- [8] *Valeurs limites d'exposition aux agents chimiques en France. Note documentaire ND 2098*. Paris : INRS ; 2005
- [9] Lauwerys R. *Toxicologie industrielle et intoxications professionnelles. 4ème édition*. Paris : Masson, 2003.
- [10] Whyatt RM, Rauh V, Barr DB, Camann DE, Andrews HF, Garfinkel R, Hoepner LA, Diaz D, Dietrich J, Reyes A, Tang D, Kinney PL, Perera FP. Prenatal insecticide exposures and birth weight and length among an urban minority cohort. *Environ Health Perspect* 2004; 112: 1125-1132.
- [11] Colborn T. A case for revisiting the safety of pesticides: a closer look at neurodevelopment *Environ Health Perspect* 2006; 114: 10-17.
- [12] Baldi I, Filleul L, Mohammed-Brahim B, Farigoule C, Dartigues JF, Schwall S, Drevet JF, Salamon R, Brochard P. Neuropsychologic effects of long-term exposure to pesticides : results from the French Phytoneer study. *Environ Health Perspect* 2001 ; 109 : 839-844.
- [13] Brown TP, Rumsby PC, Capleton AC, Rushton L, Levy LS. Pesticides and Parkinson's Disease. Is There a Link? *Environ Health Perspect* 2006 ; 114 : 156-164.
- [14] Tron I, Piquet O, Cohuet S. *Effets chroniques des pesticides sur la santé : état actuel des connaissances*. Rennes : Observatoire Régional de la Santé Bretagne ; 2001.
- [15] *Risques sanitaires liés à l'utilisation des produits phytosanitaires*. Paris : Comité de la Prévention et de la Précaution ; 2002.
- [16] Zahm SH, Ward MH. Pesticides in childhood cancer. *Environ Health Perspect* 1998; 106(S3): 893-908.
- [17] Menegaux F, Baruchel A, Bertrand Y, Lescoeur B, Leverger G, Nelken B, Sommelet D, Hémon D, Clavel J. Household exposure to pesticides and risk of childhood acute leukaemia. *Occup Environ Med* 2006; 63 :131-134
- [18] IARC. Overall evaluation of carcinogenicity to humans. *IARC monographs* Volumes 1-88 (<http://www-cie.iarc.fr/monoeval/ctrhall.html>).
- [19] Sexton K, Adgate JL, et al. Predicting children's short-term exposure to pesticides: results of a questionnaire screening approach. *Environ Health Perspect* 2003; 111 : 123-128.
- [20] Quandt SA, Arcury TA, Rao P, Snively BM, Camann DE, Doran AM, Yau AY, Hoppin JA, Jackson DS. Agricultural and residential pesticides in wipe samples from farmworker family residences in North Carolina and Virginia. *Environ Health Perspect* 2004; 112 : 382-387.

- [21] Freeman NC, Hore P, Black K, Jimenez M, Sheldon L, Tulve N, Lioy PJ. Contributions of children's activities to pesticide hand loadings following residential pesticide application *J Expo Anal Environ Epidemiol* 2005; 15 : 81-88.
- [22] Pang Y, MacIntosh DL, Camann DE, Ryan PB. Analysis of aggregate exposure to chlorpyrifos in the NHEXAS-Maryland investigation. *Environ Health Perspect* 2002; 110 : 235-240.
- [23] Wessels D, Barr BB, Mendola P. Use of biomarkers to indicate exposure of children to organophosphate pesticides: implications for a longitudinal study of children's environmental health. *Environ Health Perspect* 2003; 111 : 1939-1946.
- [24] Koch D, Lu C, Fisker-Andersen J, Jolley L, Fenske RA. Temporal association of children's pesticide exposure and agricultural spraying: report of a longitudinal biological monitoring study. *Environ Health Perspect* 2002; 110 : 829-833.
- [25] Brody JG, Aschengrau A, McKelvey W, Rudel RA, Swartz CH, Kennedy T. Breast cancer risk and historical exposure to pesticides from wide-area applications assessed with GIS. *Environ Health Perspect* 2004; 112 : 889-897.
- [26] Gunier R, Harnly M, Reynolds P, Hertz A, Von Behren J. Agricultural pesticide use in California: pesticide prioritization, use densities, and population distributions for a childhood cancer study *Environ Health Perspect* 2001; 109:1071-1078.
- [27] Lee S, McLaughlin R, Harnly M, Gunier R, Kreutzer R. Community exposures to airborne agricultural pesticides in California: Ranking of inhalation risks. *Environ Health Perspect* 2002; 110: 1175-1184.
- [28] Brody JG, Vorhees DJ, Melly SJ, Swedis SR, Drivas PJ, Rudel RA. Using GIS and historical records to reconstruct residential exposure to large-scale pesticides application. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* 2002; 12 : 64-80.
- [29] *Qualité des eaux destinées à la consommation humaine*. Lille : DRASS Nord Pas-de-Calais ; 2004.
- [30] *Les pesticides dans l'eau potable 2001-2003* Paris : Direction Générale de la Santé, Ministère de la Santé et des Solidarités ; 2005.
- [31] *Surveillance des résidus de pesticides dans les produits d'origine végétale*. Paris : Direction générale de la Concurrence, de la Consommation et de la répression des fraudes ; 2003.
- [32] *Recherche de résidus de pesticides et de métaux lourds dans l'alimentation humaine sur la région Midi-Pyrénées 1993-1994*. Toulouse : DRASS Midi-Pyrénées ; 1996.
- [33] *Fruits et légumes : les pesticides sous surveillance*. 60 millions de consommateurs. 2006 ; (401) : 36-45
- [34] *Monitoring of pesticide residues in products of plant origin in European Union, Norway, Iceland and Liechtenstein. 2003* Bruxelles: Commission Européenne; 2005. (http://europa.eu.int/comm/food/fvo/specialreports/pesticide_residues/report_2003_en.pdf)
- [35] Guide pour le calcul prévisionnel des quantités de résidus de pesticides apportées par l'alimentation (révision). *Système mondial de surveillance de l'environnement - Programme de surveillance et d'évaluation de la contamination des produits alimentaires (GEMS/Food)*. Genève : OMS ; 1997. 37 pages
- [36] Observatoire des Consommations Alimentaires. Département Perspectives de la Consommation. *Statistiques sur l'ingestion de pesticides dans les fruits et légumes. Tome1*. Paris : CREDOC ; 1992.
- [37] WHO/FSF/FOS 98.3 Revision Septembre 2003 *GEMS/FOOD Regional diets*. 98.3 Revision Septembre 2003
- [38] Lacoste P, Picque E. *Etude de la contamination des eaux de pluie par les produits phytosanitaires dans la région Nord-Pas-de-Calais*. Lille : Institut Pasteur de Lille ; 2003.
- [39] Bedos C, Cellier P, Calvet R, Barriuso E, Gabrielle B. Mass transfer of pesticides into the atmosphere by volatilization from soils and plants : overview *Agronomie* 2002 ; 22:21-33.
- [40] Rudel RA, Camann DE, Spengler JD, Korn LR, Brody JG. Phthalates, Alkylphenols, Pesticides, Polybrominated Diphenyl Ethers, and Other Endocrine-Disrupting Compounds in Indoor Air and Dust *Environ. Sci. Technol* 2003; 37 : 4543-4553
- [41] *Les pesticides en milieu atmosphérique : étude en région Centre, 2000-2001*. Orléans : Lig'Air ; sans date.
- [42] Lecoq F, Lacoste P, Picque E. *Etude de la contamination du compartiment atmosphérique par les produits phytosanitaires dans la région Nord-Pas-de-Calais*. Lille : Institut Pasteur de Lille ; A paraître.

- [43] Delaunay T. Etude de contamination de l'atmosphère par les pesticides en Nord Pas de Calais *Air Pur* 2005 ; 68 :15-20
- [44] R Development Core Team (2005). *R: A language and environment for statistical computing*. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. (<http://www.R-project.org>.)
- [45] Règlement (CE) n° 850/2004 du Parlement européen et du Conseil du 29 avril 2004 concernant les polluants organiques persistants et modifiant la directive 79/117/CEE *Journal Officiel des Communautés Européennes* n° L 158 du 30 avril 2004 et rectificatif.
- [46] INERIS. Fiches de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques. Lindane. Version n° 2 du 1er septembre 2005 <http://www.ineris.fr/>
- [47] Kumar Y Pesticides in ambient air in Alberta Edmonton : Alberta Research Council; 2001.
- [48] National Research Council, Committee on the Institutional Means for Assessment of the Risk to Public Health. *Risk assessment in the Federal government : managing the process*. Washington: National Academy Press, 1983.
- [49] *Guide pour l'analyse du volet sanitaire des études d'impact*. Saint-Maurice : Institut de Veille Sanitaire, 2000.
- [50] *Evaluation des risques sanitaires dans les études d'impact des installations classées* Verneuil-en-Halatte : INERIS, 2003.
- [51] *Valeur toxicologiques de référence : méthodes d'élaboration*. Saint Maurice : Institut de Veille Sanitaire ; 2002.
- [52] *Exposure Factors Handbook*. Washington: US Environmental Protection Agency,1997 (<http://www.epa.gov/ncea.exposfac.htm>)
- [53] Leblanc JC, Malmauret L, Guérin T, Bordet F, Boursier B, Verger P. Estimation of the dietary intake of pesticide residues, lead, cadmium, arsenic and radionuclides in France. *Food Additives and Contaminants* 2000 ; 17 :925-932
- [54] Integrated Risk Information System (<http://www.epa.gov/iris/subst/0225.htm>)
- [55] Directive 79/117/CEE du Conseil, du 21 décembre 1978, concernant l'interdiction de mise sur le marché et d'utilisation des produits phytopharmaceutiques contenant certaines substances actives *Journal Officiel des Communautés Européennes* n° L 033 du 08 février 1979
- [56] Clayton CA, Pellizzari ED, Withmore RW, Quackenboss JJ, Adgate J, Sefton K. Distribution, association and partial aggregate exposure of pesticides and polynuclear aromatic hydrocarbons in the Minnesota Children's Pesticides Exposure Study (MNCPEs) *J Expo Anal Environ Epidemiol* 2003; 13(2): 100-111.
- [57] *Etude de l'alimentation totale française. Mycotoxines, minéraux et éléments traces*. Sous la direction de Leblanc JC. Paris : Institut National de la Recherche Agronomique ; 2004.

Liste des tableaux

2.1	Comparaison des résultats du programme <i>PHYTO AIR</i> avec des données américaines en ng/m ³ (min-max)	17
2.2	Résultats de la station de Lille (somme mousse+filtre) en ng/m ³	18
2.3	Résultats de la station de Caudry (somme mousse+filtre) en ng/m ³	20
2.4	Résultats de la station de Courcelles (somme mousse+filtre) en ng/m ³	23
3.1	Part des différentes voies dans l'exposition aux pesticides	50
3.2	Les Valeurs Toxicologiques de Référence	51
3.3	Valeurs Toxicologiques de Référence dérivées pour l'inhalation	59
3.4	Comparaison des concentrations maximales de pesticides dans l'air aux valeurs toxicologiques de référence dérivées pour l'inhalation	60

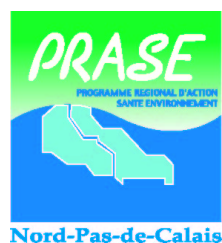
Table des figures

2.1	Fréquence de quantification des différentes substances mesurées selon le site de prélèvement . . .	26
2.2	Station de Lille	27
2.3	Station de Lille (<i>suite</i>)	28
2.4	Station de Lille (<i>suite</i>)	29
2.5	Station de Lille (<i>suite</i>)	30
2.6	Station de Lille (<i>suite</i>)	31
2.7	Station de Caudry	32
2.8	Station de Caudry (<i>suite</i>)	33
2.9	Station de Caudry (<i>suite</i>)	34
2.10	Station de Caudry (<i>suite</i>)	35
2.11	Station de Caudry (<i>suite</i>)	36
2.12	Station de Courcelles	37
2.13	Station de Courcelles (<i>suite</i>)	38
2.14	Station de Courcelles (<i>suite</i>)	39
2.15	Station de Courcelles (<i>suite</i>)	40
2.16	Station de Courcelles (<i>suite</i>)	41
2.17	Station de Courcelles (<i>suite</i>)	42
2.18	Valeurs maximales observées pour les différentes substances selon le site de prélèvement	43
3.1	VTR dérivées	63
3.2	Comparaison des concentrations dans l'air aux VTR dérivées	64

L'Institut Pasteur de Lille et ATMO Nord - Pas-de-Calais ont réalisé une campagne de mesure de pesticides dans l'air de mars 2003 à mars 2005, dans le cadre du programme *PHYTO AIR*. L'objectif de cette campagne réalisée avec le soutien du Conseil Régional Nord - Pas-de-Calais et de l'ADEME, était de détecter la présence de 99 molécules dans l'atmosphère de 3 sites de la région Nord - Pas-de-Calais.

Le Conseil Régional et l'ADEME ont demandé à l'ORS Nord - Pas-de-Calais de les aider à apprécier dans quelle mesure les résultats de ce programme pouvaient être utilisés pour contribuer à évaluer l'exposition de la population à ces produits et les conséquences sanitaires de cette exposition.

Le présent rapport vise à apporter des éléments de réponse à ces interrogations. Après un bref rappel sur les pesticides et leur impact sanitaire, nous avons discuté de l'évaluation de l'exposition de la population générale aux pesticides et nous avons présenté une synthèse des résultats du programme *PHYTO AIR*. Nous avons ensuite examiné ces résultats au regard des données disponibles sur les autres compartiments de l'environnement, puis nous avons envisagé la possibilité d'appliquer les méthodes d'évaluation des risques à ces résultats. Enfin, les limites de l'exercice réalisé nous ont conduits à émettre des recommandations dont l'application devrait permettre de mieux apprécier l'exposition humaine aux pesticides et leur impact sanitaire dans la région Nord - Pas-de-Calais.



Observatoire Régional de la Santé Nord - Pas-de-Calais



13, rue Faidherbe 59046 LILLE CEDEX

Tél : +33 (0)3 20 15 49 20

Fax : +33 (0)3 20 55 92 30

<http://www.orsnpdc.org>

Décembre 2005