Observatoire de la qualité de l'air intérieur

BULLETIN DE L'OQAI n°9 JUIN 2015

Premier état de la contamination des logements français en composés organiques semi-volatils : pesticides, phtalates, retardateurs de flamme, etc.

Les COSV, ou composés organiques semi-volatils, regroupent un ensemble de substances chimiques, d'origines diverses, présentes à la fois dans l'air et dans les poussières déposées sur les sols des environnements intérieurs. Les jeunes enfants, qui portent fréquemment leurs mains à la bouche, y sont particulièrement exposés. A l'ingestion de poussières, s'ajoutent les expositions par contact cutané et par inhalation.

Pour la première fois en France, une campagne de mesure de grande ampleur a été menée pour connaître l'état de la contamination des logements en COSV. Ce travail a été coordonné par le CSTB et l'EHESP dans le cadre des travaux de l'OQAI*, en lien avec le Programme national de recherche sur les perturbateurs endocriniens (PNRPE) et le programme de recherche Environnement-Santé-Travail de l'Anses. Il apporte des premiers éléments utiles pour évaluer les risques sanitaires potentiels liés à ces substances et proposer, si nécessaire, des mesures pour réduire les expositions.

L'OQAI a fait le point sur les enjeux de cette contamination lors d'un atelier public le 11 juin 2015 à Paris, au CSTB.

*CSTB, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment ; EHESP, École des hautes études en santé publique ; OQAI, Observatoire de la qualité de l'air intérieur

SOMMAIRE

p 2 - Des substances omniprésentes

p 3 - Les effets sanitaires

p 4 - Les méthodes mises en œuvre

p 5 - Le bilan de l'étude

p 7 - Une recherche menée aussi dans les écoles

p 8 - Les suites

CSTB le futur en construction

EHESP

irset

LERES ANALYSES · RECHERCHE

Des substances omniprésentes

Les COSV entrent dans la composition de matériaux et de produits de grande consommation, pour leurs multiples propriétés (insecticide, plastifiant, conservateur, retardateur de flamme, etc.). Certains, notamment les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), proviennent des processus de combustion.
Les COSV sont aujourd'hui largement répandus dans l'environnement : air, eaux, aliments, poussières sédimentées sur les surfaces.
L'ensemble de la population est ainsi exposé à ces molécules via différentes voies : inhalation, ingestion et contact cutané.
Dans les environnements intérieurs, les COSV sont émis par les matériaux plastiques (phtalates), les ordinateurs et les textiles d'ameublement (retardateurs de flamme polybromés notamment), les détergents (muscs de synthèse) ou les traitements insecticides (pyréthrinoïdes). Ils peuvent aussi être utilisés dans des objets du quotidien ayant, par exemple, des propriétés antiadhésives ou antisalissures (perfluorés). Certains, comme les polychlorobiphényles (PCB), ne sont aujourd'hui plus autorisés, mais ils peuvent encore être émis par des joints d'étanchéité utilisés dans les années 1970 et toujours en place dans les bâtiments. Le Tableau 1 présente des exemples de sources de COSV dans les bâtiments.
Une fois émis dans l'environnement intérieur, les COSV vont s'adsorber sur les surfaces disponibles (incluant les particules en suspension et les poussières déposées) et persister plusieurs années pour la plupart.

Tableau 1. Exemples des usages et sources de composés organiques semi-volatils dans les bâtiments.

Familles chimiques	Usages	Sources
Alkylphénols	Surfactants, conservateurs	Détergents et produits d'entretien, lessives, cosmétiques
Bisphénol-A (BPA)	Composant de polymère, révélateur chimique	Plastiques de type polycarbonate et résines époxydes, papiers thermiques
Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)	Non intentionnels (présents dans les produits pétroliers ; résidus de combustion)	Tabagisme, cuisson, combustion d'encens, chauffage domestique (charbon, bois) Air extérieur (trafic, émissions industrielles, feux de forêt, etc.)
Muscs de synthèse	Parfums	Produits de soin, cosmétiques, produits d'entretien
Pesticides organochlorés et organophosphorés, pyréthrinoïdes	Pesticides, biocides	Produits insecticides, antiparasitaires humain et animal, de traitement des plantes Air extérieur (traitement des cultures)
Phtalates	Plastifiants	Matières plastiques souples (revêtements de sol ou muraux, câbles électriques, rideaux de douche, matériel médical, etc.), lubrifiants, parfums
Polybromodiphényléthers (PBDE)	Retardateurs de flamme	Textiles, mobiliers rembourrés, plastiques durs (ordinateurs, téléviseurs, etc.)
Polychlorobiphényles (PCB)	Stabilisateurs, retardateurs de flamme	Vieux joints d'étanchéité (ouvrants, revêtements de sol)
Tributylphosphate (TBP)	Solvant, plastifiant, retardateur de flamme	Revêtements, peintures
Triclosan	Désinfectant, biocide	Produits d'hygiène corporelle, produits de consommation courante

Adapté de (Mercier et al., 2011)[1]

[1]Mercier F., Glorennec P., Thomas O., Le Bot B. (2011) Organic contamination of settled house dust, A review for exposure assessment purposes. Environmental Science and Technology, 45: 6716-6727.

Les effets sanitaires des COSV

Certains COSV sont suspectés d'avoir des effets sur le système nerveux et le système immunitaire. De plus, certains sont suspectés d'être des perturbateurs endocriniens, c'est-à-dire d'interférer avec le fonctionnement du système hormonal. Ceci peut entraîner des effets sur le système reproducteur (baisse de la fertilité, malformation, cancer, etc.) ou l'augmentation de l'obésité, par exemple.

Les critères de sélection des composés étudiés

La liste des composés recherchés dans les logements est issue d'**une étape de hiérarchisation sanitaire** des COSV présents dans les poussières au sol[2]. Cette hiérarchisation est basée sur le calcul d'un score pour chacun des COSV considérés, tenant compte, d'une part des concentrations déjà mesurées dans les environnements intérieurs en France ou dans d'autres pays à défaut, et d'autre part des repères toxicologiques existants.
Cette hiérarchisation a considéré 156 COSV, parmi lesquels 66 ont pu être classés. Les scores les plus élevés indiquent les composés susceptibles de présenter le plus de risque pour la population. Pour le choix final des composés, des contraintes de faisabilité analytique ont été prises en compte. Tous les composés n'ont pas pu être retenus du fait de l'utilisation d'une technique dite « multirésidus », choisie car elle permet l'analyse simultanée d'un nombre important de molécules[3]. La liste finale des COSV mesurés dans l'air et les poussières est présentée dans le Tableau 2.

Tableau 2. Composés recherchés dans les poussières au sol (48) et dans l'air (66).

Familles chimiques	Composés
Alkylphénols	4-tert-butylphénol (A), 4-tert-octylphénol (A) et 4-n-nonylphénol (A)
Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)	Acénaphtène (P), anthracène, benzo[a]pyrène, fluorène, phénanthrène, fluoranthène (A), pyrène (A), benzo[a]anthracène (A), chrysène (A), benzo[b]fluoranthène (A), benzo[k] fluoranthène (A), dibenzo[a,h]anthracène (A), indéno[1,2,3-c,d]pyrène (A) et benzo[g,h,i] pérylène (A)
Muscs de synthèse	Galaxolide et tonalide
Pesticides organophosphorés	Dichlorvos (P), chlorpyrifos, diazinon
Pesticides organochlorés	Dieldrine, aldrine, endrine, ∝-HCH (A), γ-HCH (lindane), oxadiazon, 4,4'-DDE, 4,4'-DDT (A), ∝-endosulfan, cis- et trans-chlordane (A), heptachlore (A), métolachlore (A)
Phtalates	Benzylbutylphtalate (BBP), di-n-butylphtalate (DBP), diéthylhexylphtalate (DEHP), diéthylphtalate (DEP), di-iso-butylphtalate (DiBP), di-iso-nonylphtalate (DiNP), diméthylphtalate (DMP) (A), di-(2-méthoxyéthyl)phtalate (DMEP) (A) et di-octylphtalate (DOP) (A)
Pyréthrinoïdes	Cyfluthrine (P), cyperméthrine (P), deltaméthrine (P), perméthrine
Polybromodiphényléthers (PBDE)	Congénères 28, 47, 85, 99, 100, 119, 153, 154 et 209 (P)
Polychlorobiphényles (PCB)	Congénères 28, 31, 52, 77, 101, 105, 118, 126, 138, 153 et 180 (A)
Autres composés	Bisphénol-A, tributylphosphate (TBP), triclosan (A)

(P) = mesuré seulement dans les poussières au sol ; (A) = mesuré seulement dans l'air

[2]Bonvallot N., Mandin C., Mercier F. et al. (2010) Health ranking of ingested semi-volatile organic compounds in house dust: an application to France. Indoor Air, 20: 458-472.
[3]Mercier F., Gilles E., Saramito G. et al. (2014) A multi-residue method for the simultaneous analysis in indoor dust of several classes of semi-volatile organic compounds by pressurized liquid extraction and gas chromatography / tandem mass spectrometry. Journal of Chromatography A, 1336: 101-111.

Les méthodes mises en œuvre

Recueil des poussières au sol

Les échantillons de poussières domestiques ont été prélevés dans des **sacs d'aspirateurs collectés en 2008-2009 lors de la campagne nationale Plomb-Habitat**[4]. Cette campagne concernait le parc des logements où vivent des enfants âgés de 6 mois à 6 ans, en France métropolitaine. Des tests de conservation ont permis de sélectionner les sacs conservés dans des conditions de température permettant de garantir la stabilité des substances[5]. Au final, **145 échantillons de poussières de sacs d'aspirateur** ont été analysés.

Prélèvements des particules dans l'air

Les mesures des COSV dans l'air ont été réalisées à partir des particules prélevées au cours de la **campagne nationale « Logements » de l'OQAI, conduite entre 2003 et 2005, dans un échantillon représentatif du parc de logements français**. Ces prélèvements ont été effectués dans le séjour des logements, durant une semaine complète, pendant des périodes d'occupation prédéfinies, de 17h à 8h en semaine et 24h/24 les samedis et dimanches. Les filtres ont été congelés immédiatement après leur pesée pour garantir leur conservation. Les filtres PM_{10} (particules de diamètre médian inférieur à 10 µm) ont été privilégiés, afin de disposer d'un maximum de matière particulaire. **285 filtres** valides ont été analysés.

Analyses en laboratoire

Pour les poussières au sol, à l'exception du bisphénol-A et du BDE 209 qui nécessitent des analyses dédiées, les concentrations en COSV ont été obtenues par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse en tandem. Après préparation, les filtres PM_{10} ont été analysés par chromatographie en phase gazeuse, équipée d'un système de thermodésorption et couplée à un spectromètre de masse triple quadripôle. L'ensemble des analyses a été réalisé par le Laboratoire d'études et de recherche en environnement et santé (LERES) à l'EHESP.

Extrapolation au parc des logements français

Pour les poussières comme pour l'air, l'application des poids de sondage (l'inverse de la probabilité d'être tiré au sort lors de l'échantillonnage) à chaque logement a permis d'exprimer les concentrations mesurées à l'échelle du parc des logements habités par des enfants âgés de 6 mois à 6 ans en France métropolitaine pour les poussières au sol et du parc des résidences principales de France métropolitaine continentale pour les COSV particulaires dans l'air.

[4]Glorennec P., Lucas J-P., Etchevers A. et al. (2015) Exposition au plomb des enfants dans leur logement. Projet Plomb-Habitat (2008-2014) : Principaux résultats, retombées et perspectives. Environnement, Risque & Santé, 14: 1-10.
[5]Blanchard O., Mercier F., Ramalho O. et al. (2014) Measurements of semi-volatile organic compounds in settled dust: influence of storage temperature and duration. Indoor Air, 24: 125-135.

Le bilan de l'étude

Une présence ubiquitaire des COSV

Les résultats montrent **une forte hétérogénéité des COSV présents** dans les logements français, comme le montre la Figure 1.

- Dans les poussières au sol, **32 des 48 COSV recherchés (67 %)** sont présents dans plus d'un logement sur deux.
- Dans l'air, **35 des 66 COSV recherchés (53 %)** sont présents dans plus d'un logement sur deux.
- Certains COSV, notamment les phtalates et les HAP, sont détectés dans quasiment tous les logements, à la fois dans l'air et dans les poussières.
- D'autres COSV sont peu détectés, comme les pesticides organochlorés et organophosphorés et certains PCB et PBDE. Quelques-uns ne sont jamais détectés.

	Poussières au sol	Particules dans l'air, PM_{10}
Nombre de logements concernés après extrapolation au parc français	3 581 991	24 672 136
COSV présents dans plus de 95 % des logements	Les 6 phtalates recherchés, le benzo(a)pyrène, le fluorène et le phénanthrène, la galaxolide et la tonalide, le bisphénol-A, la perméthrine, le BDE 209 et le TBP	Les 13 HAP recherchés, 4 phtalates (BBP, DEHP, DiBP et DiNP) et le triclosan
COSV jamais détectés	Dichlorvos	Cis-chlordane, heptachlore, BDE 119 et PCB 126

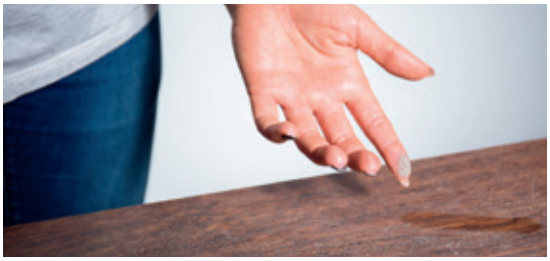
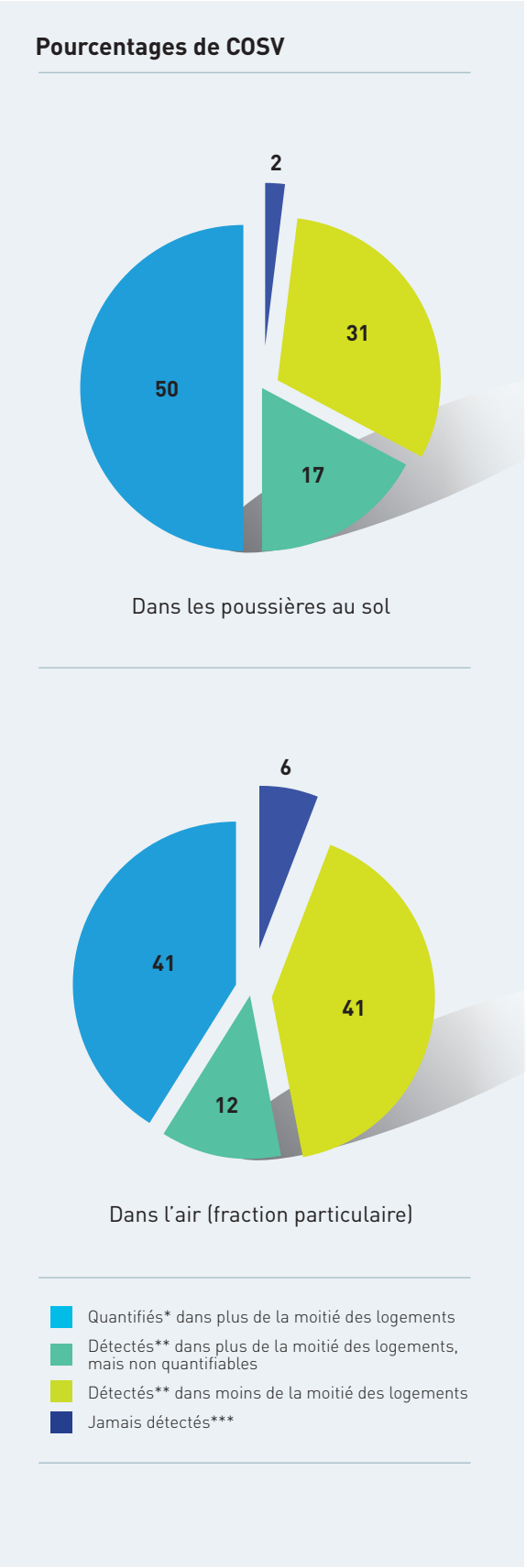


Figure 1. Pourcentages de COSV détectés et quantifiés dans l'air et les poussières des logements.



**Substance quantifiée : la substance est présente en quantité suffisante pour calculer avec précision sa concentration dans l'échantillon.*
***Substance détectée : la substance est présente dans l'échantillon, mais en quantité trop faible pour être quantifiée avec précision. Sa concentration réelle est inférieure à la limite de quantification de la méthode de mesure.*
****Substance non détectée : il est impossible de distinguer d'éventuelles traces de la substance par rapport au bruit de fond de la mesure. La substance est considérée absente de l'échantillon.*

Des concentrations variables en fonction des substances

Des **différences très importantes existent entre les concentrations observées** dans les poussières au sol : de plusieurs mg/g de poussières (concentrations maximales supérieures à 1 mg/g pour quatre phtalates : DEHP, DiNP, DiBP, BBP et la perméthrine) à quelques dizaines de ng/g pour plusieurs BDE et quelques PCB. De même, dans l'air, les concentrations vont de quelques µg/m³ pour le DEHP et le DiNP à quelques pg/m³ pour les PCB, les PBDE, les alkylphénols et les pesticides organochlorés et organophosphorés. Le Tableau 3 présente les concentrations médianes obtenues pour quelques COSV.

1 milligramme par gramme de poussières (mg/g)
=
1 000 microgrammes par gramme de poussières (µg/g)
=
1 000 000 nanogrammes par gramme de poussières (ng/g)

1 microgramme par mètre cube d'air (µg/m³)
=
1 000 nanogrammes par mètre cube d'air (ng/m³)
=
1 000 000 picogrammes par mètre cube d'air (pg/m³)

Tableau 3. Concentrations médianes mesurées dans les poussières au sol et sur les particules dans l'air (fraction PM_{10}) pour une sélection de COSV.

	Concentrations médianes dans les poussières au sol Unité : ng/g	Concentrations médianes dans l'air (phase particulaire PM_{10}) Unité : pg/m³
Benzo[a]pyrène	100	138
DEHP	337 000	46 200
DiNP	143 000	7 900
Perméthrine	2 600	56
BDE 47	17	11
PCB 101	8	1,5
Bisphénol-A	4 200	< 1 000
Galaxolide	1 077	< 42
Triclosan	Non recherché	114

Et dans les autres pays ?

Les COSV font l'objet de nombreuses publications scientifiques dans le monde entier, en croissance au cours de la dernière décennie. Ces publications portent plutôt sur les concentrations dans les poussières au sol ou sur les surfaces que dans l'air. Les concentrations mesurées dans les logements français ont ainsi été comparées aux données déjà publiées. La comparaison s'avère délicate dans la mesure où les techniques de prélèvement, de préparation des échantillons et d'analyse varient très largement entre les équipes de recherche dans le monde. Seules les études se rapprochant le plus des conditions utilisées pour les mesures françaises ont été retenues.

Le Tableau 4 ne fait pas ressortir de spécificités françaises en ce qui concerne les concentrations déjà mesurées dans d'autres pays, à l'exception cependant de la perméthrine, du DiBP et du bisphénol-A, dont les concentrations dans les poussières au sol apparaissent supérieures en France.

Tableau 4. Comparaison des concentrations médianes mesurées dans les poussières au sol et sur les particules dans l'air (fraction PM_{10}) pour une sélection de COSV avec les données disponibles pour les autres pays.

	Concentrations médianes dans les poussières au sol en µg/g		Concentrations médianes dans l'air (phase particulaire PM_{10}) en ng/m³	
	France	**Autres pays**	**France**	**Autres pays ***
DEHP	337	183 – 1 050	46,2	12 (68 – 200)
DiBP	17,0	1,9 – 9,4	0,86	/ (75 – 270)
Benzo[a]pyrène	0,1	0,009 – 0,71	0,14	0,09 – 0,27
Bisphénol-A	4,2	0,24 – 3,7	< 1,0	/ (< 0,8 – 1,82)
Perméthrine	2,6	0,09 – 1,2	0,056	/ (< 0,4)
Galaxolide	1,1	0,04 – 0,99	< 0,042	/ (143- 1 130)
BDE 209	0,76	0,06 – 10	*Non recherché*	/ (0,001 – 0,29)

*Les chiffres entre parenthèses correspondent à des concentrations totales dans l'air (phases gazeuse et particulaire).

Une recherche menée aussi dans les écoles

Les COSV sont actuellement mesurés dans le cadre de la campagne nationale « Écoles » de l'OQAI, dans l'air et dans les poussières au sol. Plus précisément, **46 COSV** sont recherchés, appartenant aux mêmes familles chimiques que les COSV étudiés dans les logements : pesticides organochlorés et organophosphorés, pyréthrinoïdes, PCB, PBDE, phtalates, muscs de synthèse et HAP.
Des données sur les COSV dans les écoles en France sont d'ores et déjà disponibles puisqu'une phase pilote préparatoire à la campagne nationale de l'OQAI avait fourni des premiers éclairages. Menée par l'EHESP dans 90 classes de 30 écoles d'octobre 2009 à juin 2010, elle avait montré, à l'instar des logements, une hétérogénéité des substances en présence et une grande variabilité des concentrations. Les composés présentant les plus fortes concentrations quel que soit le milieu (air ou poussières au sol) étaient les phtalates et, dans une moindre mesure, les muscs (galaxolide et tonalide). Les méthodes et les résultats de cette phase pilote sont disponibles sur le site Internet de l'OQAI (**http://www.oqai.fr** ; rapport complet et synthèse dans le bulletin de l'OQAI n°5).

Prélèvement des poussières au sol pour analyse des COSV

[6]Glorennec P., Mercier F., Blanchard O. et al. (2011) Cumulative indoor exposures to semi-volatile organic compounds (SVOCs) in France: the ECOS project. Indoor Air Conference. Austin, TX, USA. http://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00688091.
[7]Fournier K., Glorennec P., Bonvallot N. (2014) An exposure-based framework for grouping pollutant for a cumulative risk assessment approach. Case study of indoor semi-volatile organic compounds. Environmental Research, 130: 20-28.
[8]Blanchard O., Glorennec P., Mercier F. et al. (2014) Semi-volatile organic compounds in indoor air and settled dust in 30 French dwellings. Environmental Science & Technology, 48: 3959-3969.

Les suites données à cette étude

Ces campagnes de mesure des COSV sont intégrées au **projet global ECOS-Habitat**[6], « Expositions cumulées aux composés organiques semi-volatils dans l'habitat », piloté par l'Institut de recherche en santé, environnement et travail (Irset). Les concentrations mesurées seront utilisées pour caractériser les expositions de la population française et les risques associés, en tenant compte des mélanges de composés et de leurs effets sanitaires communs. En parallèle de la détermination des concentrations dans les milieux, le volet « ECOS-TOX » vise à l'élaboration de valeurs toxicologiques de référence (VTR) pour des groupes de COSV ayant des effets sanitaires communs, neurologiques ou sur le système reproducteur[7]. Combinées aux concentrations mesurées, ces VTR permettront d'estimer le risque sanitaire.

Afin de réaliser l'évaluation des expositions, les concentrations en phase gazeuse des COSV dans l'air, non mesurées, doivent être déterminées. Un autre volet du projet ECOS-Habitat a permis de mesurer les COSV en phases gazeuse et particulaire séparément, dans 30 logements[8]. Ces résultats sont actuellement utilisés dans un travail de prédiction par modélisation.

Des travaux spécifiques sont également en cours ou prévus, comme la recherche des relations entre les concentrations en COSV dans l'air et le taux de renouvellement d'air des logements, les caractéristiques des constructions, les habitudes des occupants ou les niveaux socio-économiques des ménages.

Ce qu'il faut retenir

DES SUBSTANCES OMNIPRÉSENTES

- **32 des 48 COSV** recherchés dans les poussières sont détectés dans plus d'un logement sur 2
- **35 des 66 COSV** recherchés dans les particules en suspension dans l'air sont détectés dans plus d'un logement sur 2

LES SUBSTANCES LES PLUS SOUVENT DÉTECTÉES ET LES PLUS CONCENTRÉES

- les phtalates et les hydrocarbures aromatiques polycycliques
- dans une moindre mesure : la perméthrine et le bisphénol-A dans les poussières, le triclosan dans l'air

DES CONCENTRATIONS TRÈS VARIABLES SELON LES SUBSTANCES

Financements : ces travaux ont bénéficié du soutien du Programme national de recherche sur les perturbateurs endocriniens (convention n°2100522667), du programme de recherche Environnement-Santé-Travail de l'Anses (convention n°EST-2011/1/128), de l'Anses (convention recherche et développement 2008-CRD-21), de l'OQAI (conventions 2011, 2012 et 2013), de l'Ademe (programme de recherche Primequal2/Predit, contrat 0962C0070), de la Direction générale de la santé (compte PCE 6311), ainsi que de fonds propres du CSTB et de l'EHESP.

Observatoire de la qualité de l'air intérieur

L'Observatoire de la qualité de l'air intérieur (OQAI) a été créé en juillet 2001. Il est placé sous la tutelle des ministères en charge du Logement, de l'Écologie et de la Santé, dans le cadre d'une convention entre ces trois ministères, le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB), l'Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie (ADEME) et l'Agence nationale de sécurité sanitaire en charge de l'alimentation, de l'environnement et du travail (ANSES).

Directrice de la publication : Andrée Buchmann / **Directrice de la rédaction :** Séverine Kirchner
Comité de rédaction du bulletin N°9 : Corinne Mandin, Philippe Glorennec, Barbara Le Bot, Olivier Ramalho, Olivier Blanchard, Nathalie Bonvallot, Fabien Mercier, Sylvie Nouaille - ISSN : en cours

JUIN 2015 - Réalisation et impression : B-EST communication - Crédits photo : OQAI, Fotolia - Imprimé en 2000 exemplaires.